

(12) NACH DEM VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES  
PATENTWESENS (PCT) VERÖFFENTLICHTE INTERNATIONALE ANMELDUNG

(19) Weltorganisation für geistiges Eigentum  
Internationales Büro



(43) Internationales Veröffentlichungsdatum  
28. Juli 2005 (28.07.2005)

PCT

(10) Internationale Veröffentlichungsnummer  
**WO 2005/068360 A2**

(51) Internationale Patentklassifikation<sup>7</sup>: **C01B 31/00**

(21) Internationales Aktenzeichen: PCT/DE2005/000042

(22) Internationales Anmeldedatum:  
14. Januar 2005 (14.01.2005)

(25) Einreichungssprache: Deutsch

(26) Veröffentlichungssprache: Deutsch

(30) Angaben zur Priorität:  
10 2004 002 566.5 17. Januar 2004 (17.01.2004) DE  
10 2004 041 146.8 24. August 2004 (24.08.2004) DE

(71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten mit Ausnahme von US): **NANOCOMPOUND GMBH** [DE/DE]; Arnold-Sommerfeld-Ring 2, 52499 Baesweiler (DE).

(72) Erfinder; und

(75) Erfinder/Anmelder (nur für US): **SCHÖNEFELD, Christian** [DE/DE]; Heinrich-Zille-Weg 2, 52511 Geilenkirchen (DE). **STEIN, Rolf** [DE/DE]; Falkengasse 7, 41836 Hückelhoven (DE). **PADALKO, Vladimir** [UA/UA]; Viborgskaya 31, apt. 27, 03056 Kiev (UA). **MATHAR, Günther** [DE/DE]; Daensstrasse 3, 52224 Stolberg (DE).

(74) Anwälte: **CASTELL, Klaus** usw.; Lierman-Castell, Gutenbergstrasse 12, 52349 Düren (DE).

(81) Bestimmungsstaaten (soweit nicht anders angegeben, für jede verfügbare nationale Schutzrechtsart): AE, AG, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MZ, NA, NI, NO, NZ, OM, PG, PH, PL, PT, RO, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SY, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, YU, ZA, ZM, ZW.

(84) Bestimmungsstaaten (soweit nicht anders angegeben, für jede verfügbare regionale Schutzrechtsart): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LS, MW, MZ, NA, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), eurasisches (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), europäisches (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, MC, NL, PL, PT, RO, SE, SI, SK, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

**Veröffentlicht:**

— mit einer Erklärung gemäss Artikel 17 Absatz 2 Buchstabe a; ohne Zusammenfassung; Bezeichnung von der Internationalen Recherchenbehörde nicht überprüft

Zur Erklärung der Zweibuchstaben-Codes und der anderen Abkürzungen wird auf die Erklärungen ("Guidance Notes on Codes and Abbreviations") am Anfang jeder regulären Ausgabe der PCT-Gazette verwiesen.

(54) Title: NANOCARBON FULLERENES (NCF), METHOD FOR PRODUCING NCF AND USE OF THE LATTER IN THE FORM OF NANOCOMPOUNDS

(54) Bezeichnung: NANO-CARBON-FULLERENE (NCF), VERFAHREN ZUR HERSTELLUNG VON NCF UND VERWENDUNG VON NCF IN FORM VON NANO-COMPOUNDS

(57) Abstract:

(57) Zusammenfassung:



**WO 2005/068360 A2**

Nano-Carbon-Fullerene (NCF), Verfahren zur Herstellung von NCF und Verwendung von NCF in Form von Nano-Compounds

- [1] Die Erfindung betrifft Nano-Carbon-Fullerene (NCF), Herstellungsverfahren für NCF und die Verwendung von NCF in Form von Nano-Compounds. NCF sind eine neue Familie von Nano-Materialien, genauer von Kohlenstoff-Hybriden.
- [2] Aus dem Stand der Technik sind eine Vielzahl von laborativen, chemischen und physikalischen Verfahren zur Erzeugung fullerener Strukturen unterschiedlicher Modifikationen bekannt, so beispielsweise von Kohlenstoff-Modifikationen über Verbrennungsreaktionen von Kohlenwasserstoff-Verbindungen (vgl. Kratoch et. al., Nature 1985, 318; Harris, European Microscopy, Sept. 1994, 13).
- [3] Weiterhin wurden Stoffe vorgestellt, welche kondensierte Strukturen enthalten, die aus Kohlenstoff mit diamantartigen und nicht-diamantartigen Modifikationen bestehen, bei welchen die kristallinen und Röntgen-amorphen Kohlenstoffphasen kompakte Sphäroide mit Durchmesserwerten von etwa 7 nm sowie Tubes mit einem Durchmesser von etwa 10 nm enthalten (vgl. Jonan Notura & Razuro Kavamura, Carbon 1984, Ausg. 22, N2, S.189ff; Van Triel & Mand Ree, F. H. J. Appl. Phys.1987, Ausg. 62, S. 1761-1767; Roy Greiner et. al., Nature 1988, Ausg. 333 vom 2. Juni 1988, S. 440-442).
- [4] Die Röntgenogramme der nicht-diamantartigen Kohlenstoffmodifikation werden dabei durch Abstände der Zwischenebenen in Größenordnungen von 0,35 nm bei Reflexionen (002) charakterisiert, die für reine amorphe oder stochastisch desorientierte Formen des Graphit typisch sind und auf einen fullerenartigen Strukturaufbau hinweisen.
- [5] Die Kristall-Phase des Kohlenstoff stellt sich dabei als kompakte Sphäroide mit einem Durchmesser von etwa 7 nm mit großen Oberflächenwerten dar. Elektronenfraktometrische Untersuchungen liefern folgende Reflexionswerte in den Zwischenebenen:  $d = 0,2058; 0,1266; 0,1075; 0,8840$  und  $0,636$  nm, welche den Flächenreflexionswerten der kubischen Kristallmodifikation des Kohlenstoff bei (111), (220), (400) und (440) entsprechen.
- [6] Gleichfalls sind Verfahren zur Herstellung ähnlicher Stoffe aus Reaktionsprodukten von hoch-energetischen Verbindungen bekannt, die in Inertgasmedien bei atmosphärischem Druck zur Reaktion gebracht werden (vgl. Jonan Notura & Razuro Kavamura, Carbon, 1984, Ausg. 22, N2, S. 189ff; Van Triel, Mand Ree, F. H. J. Appl. Phys. 1987, Ausg. 62, S. 1761-1767; Roy Greiner et. al., Nature, 1988 Ausg. 333 vom 2. Juni 1988, S. 440-442).

[7] Die beschriebenen Regime finden jedoch als industrielle Verfahren keine entsprechende Anwendung und sind derzeit nur im Labormaßstab praktikabel.

[8] Weiter sind hochkonstruierte Kohlenstoffmodifikationen bekannt, die aus folgenden Massenverhältnissen (Massen-%) bestehen: Kohlenstoff (84,0 bis 89,0), Wasserstoff (0,3 bis 1,1), Stickstoff (3,1 bis 4,3), Sauerstoff (2,0 bis 7,1) sowie nichtverbrennbare Beimengungen (bis 0,5) und mit Kohlenstoff in kubischer Modifikation (30,0 bis 75,0), Röntgen-amorphe Kohlenstoffphase (10,0 bis 15,0), wobei die Oberfläche dieser Stoffe mit Methyl-, Karboxyl-, Chinon-, Laktone-, Aldehyd-, und Ester-Gruppen, etc. besetzt ist (vgl. Patentliteratur RU Nr. 2041165 MPK6 SO1V 31/06, veröffentl. BI. Nr. 22, 09.08.95; WO 00/78674 A1; WO 02/07871 A2).

[9] Gleichermaßen ist ein Verfahren (vgl. DE 199 55 971) zur Herstellung von Kohlestoff-Modifikationen mit fullerenartigen Dotierungen (Cluster) bekannt, bei dem reaktive Umsetzungen von energiereichen organischen Verbindungen mit negativer Sauerstoffbilanz in geschlossenen Volumina (Reaktionsgefäßen) sowie in einer Inertgasatmosphäre bei nachfolgender Abkühlung der Reaktionsprodukte mit Geschwindigkeiten von 200 – 6000 Kelvin/min stattfindet. Die so erzeugten Kohlenstoff-Modifikationen zeigen folgenden Cluster-Aufbau: Im Zentrum des Clusters ist ein Kern positioniert, der aus einer kubischen Kristall-Phase besteht, um den sich eine röntgenamorphe Kohlenstoffphase gruppiert, die wiederum in eine kristalline Kohlenstoffphase übergeht. Auf der Oberfläche der kristallinen Kohlenstoffphase befinden sich dabei chemische Restgruppen. Die erzeugten Verhältnisse zwischen den einzelnen Phasen des Kohlenstoffs und den angelagerten chemischen Gruppen auf der Oberfläche ermöglichen die Anwendung dieses Materials als Komponente von hocheffektiven Verbundwerkstoffen, vor allem in der Funktion als Additiv zur Verbesserung der physikalisch-mechanischen Anwendungscharakteristika von Kunststoffen. Die Zugabe von beispielsweise 1 bis 3 % dieses Materials in hochgefüllte Elastomere führt zur Verbesserung des Abtreibverhaltens um das 1,2- bis 1,4-fache, bei schwachgefüllten Mischungen um das 2,0- bis 5,0-fache.

[10] Der vorliegenden Erfindung liegt die Aufgabe zu Grunde, die Kristallstruktur der kubischen Kohlenstoff-Modifikationen so anzupassen, dass die Oberflächenatome einen erheblichen Anteil der Gesamtzahl der Kohlenstoffatome ausmachen, und mechanisch stabile Cluster-Kompakte – ähnlich zu polykristallinen Strukturen – in Form von „sphärischem Carbonit“ zu formieren. Die Erfindung geht davon aus, dass die fullerene Cluster-Molekularstruktur bereits bekannter Stoffe deutlich besser gestaltet und derart modifiziert werden kann, dass erweiterte Anwendungsmöglichkeiten im industriellen Bereich erschlossen werden.

[11] Nach einem Aspekt der Erfindung löst diese Aufgabe eine nano-partikuläre Kohlenstoff-Struktur, welche Kohlenstoff in hexagonaler und kubischer Modifikation sowie Sauerstoff, Wasserstoff, Stickstoff und unverbrennbare Beimengungen enthält, wobei diese nano-partikuläre, fullerene Formationen aufweisen und stabilisiert sind.

5 [12] Eine dermaßen hergestellte Kohlenstoff-Struktur kann ein poröses Volumen und ausgeprägte Adsorptionspotentiale besitzen. Die zu seiner Herstellung verwendeten Elemente werden im Herstellungsverfahren bevorzugt mittels chemisch-dynamischer Umsetzung von organischen Energieträgern mit negativer Sauerstoffbilanz in einem geschlossenen Volumen mit Inertgasatmosphäre unter einem atomaren Wasserstoffplasma bei nachfolgender Abkühlung der Reaktionsprodukte aufbereitet und stabilisiert. Das  
10 vorgeschlagene Material liegt in der Regel als ein Pulver mit dunkelgrauer Farbe vor, dessen spezifisches Gewicht etwa 2,3 bis 3,0 g/cm<sup>3</sup> beträgt, was dem Wert von 65 bis 85 % des spezifischen Gewichts einer kubischen Kohlenstoffstruktur entspricht. Die Röntgenphasenanalyse fixiert idealerweise einen einzigen Phasen-Peak, nämlich denjenigen der kubischen Modifikation des Kohlenstoffs (Diamant).

[13] Die Mikroelektronogramme des erfindungsgemäßen Materials unterscheiden sich dabei von  
15 denen des bei der dynamischen Synthese erzeugten ultradispersen Nano-Diamantsystems durch eine verbreiterte Linie (111), aber auch durch die Anwesenheit gut entwickelter lokaler Reflexe, was zeigt, dass der geometrische Aufbau der Kristalle durch spezifische und neue Charakteristika bestimmt wird.

[14] Das Streumuster der Röntgenstrahlen verweist darauf, dass die Zentral-Kristalle der kubischen Gitterphase von einer Hülle (Käfig) aus Kohlenstoffatomen umgeben sind, die aus einer regelmäßigen  
20 Anordnung von Fünf- und Sechsecken besteht und der räumlichen Struktur eines „Bucky-Ball“, d. h. einer Fulleren-Morphologie, entspricht (vgl in Figur 1: nanometrische Diamantstruktur in hell, Fullere-„caps“ in dunkel).

[15] Nach den Vorschlägen der Erfindung kann bei der Erzeugung des Kohlenstoffs mit kubischer Kristall-Modifikation durch chemische Umsetzung von hochenergetischen Verbindungen ein nano-partikuläres Stoffsystem erhalten werden, welches Teilchengrößen von 5 bis 10 nm, spezifische Oberflächenwerte von bis zu 700 m<sup>2</sup>/g und höchste Adsorptionspotentiale, in Bereichen bis zu 500 oder sogar 700  
25 J/g, sowie primäre und sekundäre Poren mit fullerenem Strukturaufbau aufweist.

[16] Das Absorptionsspektrum der vorliegenden Fulleren-Materialien weist im Gegensatz zu natürlichen und synthetischen Kohlenstoff-Strukturen mit kubischer Kristallphase (Diamant) eine Reihe von  
30 spezifischen Besonderheiten auf, wobei die Monokristalle farblos erscheinen können. Die charakteristische Graufärbung der Cluster ist auf diffuse Lichtstreuung und -reflexion zurückzuführen. Optische Ani-

sotropie liegt idealerweise nicht vor. Die elektronische Struktur der vorliegenden Fullereene weist darauf hin, dass diese unabhängig von der Kristallitgröße Licht einer bestimmten Wellenlänge aussenden können. Nano-Kristalle aus herkömmlichen Halbleitermaterialien hingegen zeigen in der Regel eine gravierende Änderung in der Farbe des von ihnen ausgesandten Lichts, wenn ihr Durchmesser im Bereich von nur  
5 wenigen Nanometern verändert wird.

[17] Der Brechungsindex (refraktion index) kann in Bereichen von bis zu über 2,55 und damit erheblich höher liegen als der Wert von entsprechend vergleichbaren Strukturen.

[18] Die Absorptionsgrenzen der fullerenen Materialien (NCF) im UV-Bereich liegen idealerweise in der Bandbreite von 220 bis über 300 nm sowie im nahen IR-Bereich bis über etwa 2810 nm.

10 [19] Die Materialteilchen und Cluster besitzen bevorzugt ovale Formen, auf deren innerer und äußerer Oberfläche sich offene Poren lokalisieren können. Die durch BET ermittelten Abmaße der offenen Poren betragen bevorzugt 12 bis 100 Å, wobei die Volumenadsorption Werte bis zu 700 J/g erreichen kann.

15 [20] Die thermische Behandlung der NCF im Vakuum oder in Inertgas-atmosphäre (Argon) liefert nach einem weiteren Aspekt der Erfindung Fullerene-Shells („OLC“ bzw. „onion-like carbons“), wobei etwa 1800 bis 2000 Kohlenstoffatome containerartig einen Nanokern mit kubischer Kristallstruktur und 900 bis 1000 Oberflächenatomen umfassen.

20 [21] Figur 2 zeigt ausgewählte TEM-Aufnahmen von NCF-Shells (Vakuum; a: 1415 K; b: 1600 K; c: 1800 K; d: 2150 K). NCF-Clusterverbunde im trockenen und pulverförmigen Zustand sind in Figur 3 dargestellt.

25 [22] Grundlage für die Anwendung von NCF-Materialien sowie für die multifunktionale Kombination der NCF-Systeme mit anderen nano-partikulären Werkstoffen, vorrangig mit metallischen, metalloxidischen, oxidischen, mineralischen, organischen und anderen Stoffgruppen, bilden Technologien für die spezielle Oberflächen-Modifizierung der nano-partikulären Systeme sowie für die Herstellung von stabilen Nano-Compounds und für ein optimales Enabling in entsprechende Makrostrukturen (organische bzw. anorganische Matrices etc.).

30 [23] Zur Lösung der Aufgabe war es erforderlich, die komplexe Dynamik der NCF-Systeme in Kombination mit anderen multifunktionalen Nano-Partikeln zu charakterisieren, die Wechselwirkungskräfte zwischen den Nano-Partikeln (v. d. Waals-Haftkräfte, Masse, Form, Partikelgröße u. a.) zu erfassen, die Produktzustände zwischen Vereinzelung, Dispergierung und Agglomeration sowie die Abhängigkeiten

von ZETA-Potential und Leitfähigkeit zu bestimmen, optimale Dispergierungsschritte (Methodik, Intensität, Zeitdauer) sowie adaptierte technologische Hilfs- und Betriebsmittel (Medien, Stabilisatoren) einzusetzen und Verfahren zur Modifizierung der Nano-Partikeloberflächen aufzubauen und umzusetzen.

5 [24] Ausschlaggebender Prozess für die Lösung der Aufgabe sind die gezielte Anwendung von Technologien für die chemische und physikalische Modifizierung von Oberflächen nano-partikulärer Werkstoffe in Abhängigkeit ihrer spezifischen energetischen Oberflächen-Charakteristika (spezifische Oberfläche, Adsorptions- und ZETA-Potential) sowie die gezielte Beeinflussung bzw. Gestaltung der hydrophoben bzw. hydrophilen Balance.

10 [25] Aspekte der vorliegenden Erfindung führen zu stabilen multifunktionalen Nano-Verbundcompounds mit basierten, wässrigen und organischen Träger-Matrizes sowie mit ausgewählten Polymeren, Monomeren und Oligomeren.

15 [26] Figur 4 zeigt ein bevorzugtes technologisches Grundschema mit adaptierten Produktapplikationen wie beispielsweise: Hochleistungssysteme (Suspensionen, Pasten) als nano-compoundierte Fertigprodukte für das ultra-präzise Polieren (UPP, CMP, MRP) von Oberflächen, vorrangig von Leistungsoptiken, Halbleiterelementen der Leiterelektronik und super-harten kristallinen Sonderwerkstoffen; Außerdem Produkte auf organischer Basis mit multivalent verbesserten Eigenschaften (Kunststoffe, Lacke, Coatings, Öle, Fette, Wachse, elektrochemische/galvanische Beschichtungen etc.) wie insbesondere in Bezug auf mechanische tribologische und chemische Charakteristika, optische Kenn- und Leistungsparameter, antimikrobielle und easy-to-clean-Eigenschaften; Darüber hinaus beispielsweise Adsorbentien, Getter-  
20 Speicher, Filter, Katalyse- und Wirkstoffträger u.a.

[27] In Figur 5 sind ausgewählte NCF-Nanocompounds (in 1000-facher Vergrößerung) auf wässriger, polymerer und oligomerer Basis dargestellt.

[28] Weitere Vorteile der bisher beschriebenen Aspekte der Erfindung sowie weitere Aspekte der Erfindung werden nachfolgend anhand von sechs Beispielen verdeutlicht.

## Beispiel 1

Industrielle Herstellung von Nano-Carbon-Fullerenen (NCF) mit vorwiegend quasi-monokristalliner Morphologie

[29] Eine Stoffkombination von organischen Energieträgern, vorrangig Gemische von  $C_7H_5N_3O_6$  (Sauerstoffwert: -73,9 %) und Cyclotrimethylentrinitramin (Sauerstoffwert: -21,6 %) wird mit einer Masse von 15 kg in einer Enklaven-Kammer mit einem freien Raumvolumen von 100 m<sup>3</sup> mit negativer Sauerstoff-Bilanz zur chemischen Umsetzung gebracht.

[30] Die Reaktionskammer besteht bei dieser Synthesetechnologie aus drei horizontal und axial angeordneten Zylindern, wobei der Zentralzylinder feststehend ausgelegt ist. Die beiden Seitenzylinder sind mittels Elektroantrieb axial verschiebbar und gewährleisten die Beschickung des Zentralzylinders mit dem Energieträger sowie die Installation des Initial- und Kühlsystems.

[31] Die chemische Reaktion erfolgt gesteuert im Stoßwellen-Gegenlauf ( $P > 7,26 \times 10^5$  bar) in Inertgasatmosphäre (<1 bar) unter Anwesenheit eines atomaren Wasserstoff-Plasmas. Nach Reaktionsverlauf erfolgt die Ausspülung des Synthesegutes unter Wasserdruck sowie seine Einleitung in ein systemintegriertes Sammelreservoir. Die nachgeschaltete Reinigung der NCF-Systeme wird auf chemischem Wege durchgeführt.

[32] Technologische und erfindungsspezifische Charakteristika hierbei sind insbesondere wie folgt:

[33] Erzeugung hochreiner nano-partikulärer Kohlenstoffstrukturen in kondensiertem Aggregatzustand mittels chemischer Umwandlung von erfindungsgemäß eingesetzten, kombinierten, festen, flüssigen und hybriden, hochenergetischen Kohlenstoff-Spenderverbindungen mit negativer Sauerstoffbilanz.

[34] Erreicht wird zunächst eine Formierung der kurzzeit-physikalischen Umbildung der hexagonalen Kohlenstoff-Kristallgitter-Struktur in die kubische (Diamantgitter) sowie die fullerene Raumgitter-Struktur („Käfig“-Struktur mit  $\gg C_{240}$ ) nach dem Martensit-Mechanismus durch: Realisierung einer topologischen Temperatur-Plattform von 3000 bis 4500 °C; Umsetzung eines lokalen Druckniveaus von mindestens 4,5 GPa; Formierung dynamischer gegenläufiger Stoßwellen in Bereichen von mehr als 100000 atm sowie Begrenzung der kurzzeit-physikalischen Reaktionszeit der chemischen Umsetzung auf höchstens  $7,5 \times 10^{-6}$  s. Zudem wird eine Verhinderung der Regraphitisierung der erzeugten Fullerene-Strukturen durch Formierung eines atomaren Wasserstoff-Plasmas für den Zeitraum des chemischen Reaktionsverlaufes erreicht.

[35] Die wesentlichsten Eigenschaften und Charakteristika der NCF und die damit in Verbindung stehenden innovations- und Applikationspotentiale zeigt Figur 6.

[36] In Figur 7 sind NCF optisch mittels TEM dargestellt. Die Figuren 8/1 bis 8/6 zeigen ein bevorzugtes technologisches Fluss-Schema des Syntheseprozesses.

5

### Beispiel 2

Industrielle Herstellung von Nano-Carbon-Fullerenen polykristalliner morphologischer Struktur (Poly-NCF, PNCF)

10 [37] In einem nachgeschalteten technologischen Verfahrensschritt werden nach einem Aspekt der Erfindung NCF mit vorwiegend quasi-monokristalliner Morphologie mit Hilfe eines CVD (Chemical Vapour Deposition)-gestützten Sinterprozesses in einem speziellen Hochdruck-Vakuumsystem bei Drücken von 8,0 bis 10,5 GPa und Temperaturen von 1000 bis 1500°C mit nachfolgender mechanischer Zerkleinerung, chemischer Aufarbeitung und entsprechender Korngrößen-Klassierung in poly-strukturierte NCF formiert.

15 [38] Technologische und erfindungs-spezifische Charakteristika sind hierbei wie folgt:

[39] Zunächst erfolgt eine Realisierung des Diffusionsprozesses eines kohlenstoffartigen Trägergases, bevorzugt von Methan, in das Raumporen-System der NCF-Strukturen.

20 [40] Außerdem erfolgt eine Formierung der  $sp^3$ -Hybridisation unter folgenden Bildungsparametern: Massengeschwindigkeit in  $g/cm^2/s$  nach dem Berechnungsterm  $537,4 \exp [ -2,68 \times 10^5 / RT ] \times CRT/16$ ; Lineare Geschwindigkeit in  $m/s$  nach dem Berechnungsterm  $2,67 \exp [ -2,68 \times 10^5 / RT ] \times CRT/16$ , worin R die Universelle Gaskonstante, C die Kohlenstoff-Konzentration in der Gasphase in  $g/cm^3$  und T die Temperatur in K bedeuten.

[41] Figur 9 zeigt die TEM-Aufnahme von poly-strukturierten NCF in Körnungsgrößen von 2,0 bis 5,5  $\mu m$ . In Figur 10 ist eine bevorzugte Produktionstechnologie schematisch dargestellt.

25

### Beispiel 3



Herstellung und Verwendung von mit Nano-Partikeln kombinierten multi-funktionalen NCF-Compounds zur Verbesserung der mechanischen Eigenschaften von Lacken (Coatings) am Beispiel des 2K-PUR-Matt-Lacksystems

[42] Die Modifizierung fertiger Lacksysteme mit NCF-Partikeln erfolgt nach einem Aspekt der Erfindung auf indirektem Wege, indem die Nano-Partikel zunächst in einem möglichst polaren und gering viskosen Lösungsmittel, welches bereits Bestandteil des Lackes ist, vordispersiert werden. Diese Vordispersate werden anschließend zur Modifizierung von Lack-Systemen eingesetzt.

[43] Zur Modifizierung des 2K-PUR Mattlackes wird beispielsweise ein n-Butylacetat als Vordispersat eingesetzt, in dem 10 % monokristalline NCF-Partikel und 2 % des Dispergierhilfsmittels Disperbyk-2150 (Lösung eines Block-Copolymers mit basischen pigmentaffinen Gruppen) enthalten sind. Die Dispergierung der monokristallinen Partikel erfolgt zunächst in einem Ultraschallbad (2 x 600 W/Per., 35 kHz) und anschließend mit einer Ultraschall-Durchflussapparatur (HF Ausgangsleistung 200 W, 20 kHz). Zur Entfernung etwaiger Verunreinigungen wird ein Sieb mit einer Maschenweite von 65 µm eingesetzt.

[44] 500 g des 2K-PUR Lackes (Komponente 1) werden zunächst in einem Becherglas vorgelegt und nacheinander mit 100 g Sub-µm-Glasflakes (Glasplättchen aus Borsilikatglas, mittlere Größe 15 µm) und 15 g nano-partikuläres Aerosil® R972 (hydrophobisiertes, pyrogenes SiO<sub>2</sub>, mittlere Größe der Primärteilchen 16 nm) versetzt. Die Dispergierung der Additive erfolgt im Ultraschallbad – hier: Glasplättchen 30 min und Aerosil® R972 für 60 min. Anschließend werden 5 g des n-Butylacetat-Vordispersates eingerührt und erneut im Ultraschallbad für die Dauer von 60 min homogenisiert. Das fertiggestellte Nano-Compound führt zu entsprechend multi-funktionalen Verbesserungen der komplexen mechanischen Kenn- und Leistungsdaten des Matt-Lacksystems.

[45] Die Applikation (Enabling) des modifizierten Lackes erfolgt entsprechend den Herstellerangaben, indem die modifizierte Komponente 1 mit der vorgeschriebenen Menge Härter (Komponente 2) versetzt wird.

[46] Getestet wurden u. a. vergleichende Veränderungen der Oberflächentexturen (Mattlacke haben eine so unregelmäßige Feinstruktur der Oberfläche, dass das Licht in alle Richtungen gestreut wird und kaum noch Spiegelwirkung vorhanden ist), der komplexen mechanischen Charakteristika sowie die Vernetzungsdichte des modifizierten und des Referenz-Lacksystems (nicht modifiziert).

[47] Die Bewertung der Oberflächentextur nach maschineller Behandlung mit Stahlwollvlies, mit handelsüblicher Schleif- und Polierpaste erfolgte mikroskopisch bei 100facher Vergrößerung und über die

Bestimmung der Rauigkeitswerte mittels eines Perthometers M4Pi der Firma Mahr nach DIN EN ISO 4287.

[48] Die ermittelten Rauigkeitswerte – insbesondere die Mittenrauwerte  $R_a$  – verweisen auf eine wesentliche Verbesserung der Abriebfestigkeit und der Martens-Härte des modifizierten Lackes. Die  
5 Textur (Mattigkeit) der Lackoberfläche unterliegt im Vergleich zum Referenz-Lack nach den mechanischen Belastungen keinen bzw. nur unerheblichen Veränderungen. Diese Ergebnisse werden durch die mikroskopischen Auswertungen wiedergegeben.

[49] Figur 11 zeigt deutlich die Verbesserung der Abriebfestigkeit sowie der Oberflächen-Textur der NCF-verbesserten Lack-Systeme im Vergleich; Figur 12 zeigt die Erhöhung der Martens-Härtewerte und  
10 die Verbesserung der Scheuerbeständigkeit.

## Beispiel 4

Herstellung und Verwendung von mit Nano-Partikeln kombinierten multi-funktionalen NCF-Compounds zur Verbesserung der tribologischen Eigenschaften (Gleiteigenschaften) von Gleitlacksystemen (Trocken-Schmiermittel) am Beispiel eines NCF-modifizierten Acrylat-Lackes auf Wasserbasis

5 [50] Nach einem Aspekt der Erfindung erfolgt die Modifizierung fertiger Lack-Systeme mit NCF-Partikeln auf indirektem Wege, indem die Nano-Partikel in einem möglichst polaren und gering viskosen Lösungsmittel, welches bereits Bestandteil des Lackes ist, vordispersiert werden. Diese Vordispersate werden im weiteren zur Modifizierung von Lacksystemen eingesetzt.

10 [51] Der hier gewählte Acryl-Lack setzt sich aus zwei Komponenten zusammen. Komponente 1 enthält u. a. die Acrylkomponente (Mowilith), welche sehr scherempfindlich ist. Aus diesem Grund wird hier die zweite Komponente modifiziert, deren Bestandteile im wesentlichen zur Viskositätseinstellung (Verdicker) fungieren.

[52] Als Mischungsverhältnis wird Komponente 1 zu 86,4 Teilen und Komponente 2 zu 13,6 Teilen gewählt.

15 [53] Zur Modifizierung der Komponente 2 wird ein wässriges Vordispersat eingesetzt, in dem 5 % monokristalline NCF-Partikel enthalten sind. Die Dispersierung der monokristallinen Partikel erfolgt zunächst in einem Ultraschallbad (2 x 600 W/Per., 35 kHz) und anschließend mit einer Ultraschall-Durchflussapparatur (HF, Ausgangsleistung 200 W, 20 kHz). Zur Entfernung etwaiger Verunreinigungen wird ein Sieb mit einer Maschenweite von 38 µm eingesetzt.

20 [54] 15,3 g der Komponente 2 werden mit 200 g des wässrigen Vordispersates versetzt und zur Viskositätseinstellung 75 % des Wassers durch Temperierung auf 100 °C entfernt. Die modifizierte Komponente 2 wird anschließend zu 85 g der Komponente 1 gerührt. Zur Homogenisierung und Stabilisierung wird der modifizierte Lack für 30 min im Ultraschallbad behandelt, mit 1,8 g Tamol® NN8906 (Naphtalinsulfonsäure-Kondensationsprodukt) versetzt und erneut für 30 min im Ultraschallbad dispersiert. Etwaige Verunreinigungen werden mit einem Sieb der Maschenweite von 180 µm entfernt. Der fertig modifizierte Lack enthält 6,5 Gew.-% NCF-Partikel und 1,3 GEW.-% Tamol® NN 8906.

25

[55] Durch die Modifizierung verbessern sich die Gleitreibungswerte im Vergleich zum nicht-modifizierten Lack um mehr als das Doppelte, wobei die guten Abriebsfestigkeiten im Taber-Abraser-Test des Acrylat-Lackes beibehalten werden.

[56] Im Vergleich zu kommerziellen PTFE- und MoS<sub>2</sub>-Gleitlack-Systemen weist der NCF-modifizierte Acrylat-Lack bezüglich der Gleitreibungswerte eine Besserstellung auf, wobei sich die Abriebsfestigkeit im Mittel um den Faktor 6 erhöht. Dies ist ein wesentlicher Vorteil, der sich für den Anwender beim Einsatz von Gleitlacken zur Trockenschmierung vor allem in einer erhöhten Langzeit- und Lebensdauer-Schmierung und wirtschaftlichen Wertsteigerung auswirkt.

[57] Figur 13 zeigt die Besserstellungsmerkmale in der Gegenüberstellung zu derzeit handelsüblichen Gleitlack- und NC-Härtelacken.

#### Beispiel 5

10 Herstellung und Verwendung einer wässrigen Nano-Suspension (Nano-Compound) für das Ultra-Präzisions-Polishing auf der Basis von Poly-NCF am Beispiel des Korngrößen-Bereiches 0 bis 0,5 µm für  
hochtechnologische Anwendungen

[58] Nach einem weiteren Aspekt der Erfindung wird zur Herstellung einer Nano-Suspension als Vorstufe eine ca. zweiprozentige, pH-neutrale Basis-Suspension eingesetzt, welche für den speziellen Anwendungsfall auf ca. 1,5 % verdünnt und mit verdünnter Natronlauge auf einen pH-Wert von etwa 8 eingestellt wird.

[59] Die Basis-Suspension setzt sich aus dem Poly-NCF-System mit Korngrößen zwischen 0 und 0.5 µm, destilliertem Wasser sowie den Stabilisatoren, dem Konsistenzregler Polyvinylpyrrolidon (PVP bzw. Polyvidon 25 (LAB)) und nano-partikulärem Aerosil® Ä300 (pyrogenes SiO<sub>2</sub>, mittlere Größe der Primärteilchen 7 nm) zusammen.

[60] Zur Herstellung der Suspension werden 100 g der Poly-NCF-Partikel portionsweise in 5 kg Wasser eingerührt und zunächst für die Dauer von 3 h in einem Ultraschallbad (2 x 600 W/Per., 35 kHz) dispergiert. Zur weiteren Dispergierung wird das Dispergat anschließend für 45 min mit einer Ultraschall-Durchflussapparatur (HF, Ausgangsleistung 1000 W, 40 kHz) behandelt. Die Abtrennung etwaiger Verunreinigungen erfolgt mit einem Sieb der Maschenweite von 38 µm.

[61] Eine Stabilisierung erfolgt durch Zugabe von 250 g Aerosil® Ä300 und 10 g einer fünfprozentigen, wässrigen PVP-Lösung. Anschließend wird der Ansatz erneut für 45 min mit der Ultraschall-Durchflussapparatur dispergiert.

[62] Die Herstellung der speziellen pH 8-Suspension – angesetzt werden ca. 4,8 kg – erfolgt durch Verdünnung von 3,6 kg der Basis-Suspension mit 1,2 kg destilliertem Wasser (im Verhältnis 3:1, w:w) und anschließender Homogenisierung im Ultraschallbad für 15 min. Der pH-Wert der Suspension wird mit einer 1,5 %igen Natronlauge auf  $\text{pH } 8 \pm 0,2$  eingestellt. Ein Richtwert von ca.  $9 \pm 2$  ml Natronlauge pro kg der Suspension hat sich als nützlich herausgestellt.

[63] Es ergibt sich eine Zusammensetzung des Nano-Compound in Gewichtsanteilen in etwa wie folgt:

Poly-NCF (0 bis 0,5 $\mu\text{m}$ ):	1,4 %
destilliertes Wasser:	95 %
Aerosil® A300:	3,6 %
Polyvidon:	0,007 %
NaOH (s):	$0,012 \pm 0,004$ %

[64] Hierfür wurden hervorragende Eigenschaften ermittelt. Beispielhafte erzielte Test-Parameter und Leistungs-Charakteristika werden nachfolgend angegeben. Einsatzgebiet war hierbei die ultrapräzise Endpolitur von planen Spezial-Stepper-Optiken aus  $\text{CaF}_2$ .

[65] Die Testversuche waren wie folgt aufgebaut:

[66] Versuchsvoraussetzung: Ein rundes  $\text{CaF}_2$ -Teil, bei dem ein kleiner Bereich mit Schutzlack abgedeckt wird, um so den Zustand vor dem Ätz- bzw. Löseangriff des Poliermittels zu konservieren.

[67] Versuchsablauf: Die zuvor angegebene Spezialoptik wurde nach einem Standardverfahren (vgl. Figur 14: „Standardversuch zur Bewertung der Poliermittel“) zur Hälfte mit einem rotierenden Werkzeug, belegt mit einem weichen Poliertuch, bearbeitet, um Konstantabtrag zu erreichen. Die Bearbeitung erfolgte in senkrechten Mäanderbahnen, beginnend vom linken Rand.

[68] Ca. ein halber Liter der Suspension wurde im Umlauf hinzu gegeben. Bearbeitungszeiten lagen zwischen 30 Minuten und 5 Stunden.

[69] In gleichem beschriebenen Ablauf wurden Versuche mit Wettbewerbs-Standard-Produkten als Vergleichsbasis durchgeführt.

[70] Folgende Ergebnisse wurden erreicht: Der mittlere Abtrag mit der neuen Suspension lag bei etwa 800 nm, zum Vergleich lag er bei Standard-D0,25er Suspensionen bei 30 bis 500 nm.

[71] Die erreichte Mikrorauhigkeit (auch dargestellt in Figur 15) betrug bei 2,5 mal etwa 1,1 bis 1,2 nm (im Vergleich bei Standard-D0,25 zwischen 1,3 und 1,7 nm), bei 20 mal etwa 0,6 bis 0,7 nm (im Vergleich bei StandardD0,25 etwa 1,1 bis 1,7 nm)

[72] Den Kratzerstatus zeigt Figur 16. Bei der neuen Suspension (gemessen im Dunkelfeldmikroskop bei 200-facher Vergrößerung) gab es abzählbar wenige, an der Grenze der Sichtbarkeit liegende Kratzer. Bei StandardD0,25 gab es deutliche und mehr sichtbare Kratzer (vgl. rechtes Bild)

[73] Im Vergleich mit anderen getesteten Suspensionen auf Diamantbasis der 0,25 µm-Klasse stellt die getestete neue Suspension mit Poly-NCF somit ein Optimum hinsichtlich Abtragsleistung, Mikrorauhigkeit, Pasausbildung und Verkratzung der Topographie dar. Auch hat sich gezeigt, dass mit der neuen Suspension eine Trocknungskompensation durch Zugabe von Wasser möglich ist, ohne damit kratzende Agglomerate zu provozieren.

[74] Dadurch ist eine Verwendung der neuen Suspension für die Herstellung von Spezial-Stepperoptiken im Lithographie-Bereich auch unterhalb der von der Industrie angestrebten 157-er Nanotechnologie möglich.

[75] Figur 17 zeigt die zusammengefassten Leistungsergebnisse im Vergleich zu derzeit auf dem Markt eingeführten Referenzprodukten von Ultra-Polishing-Systemen.

20

### Beispiel 6

Herstellung und Verwendung einer wasserlöslichen Poly-NCF-Paste (wasserfrei) für das Ultra-Präzisions-Polishing am Beispiel des Korngrößen-Bereiches 0,5 bis 1,0 µm für hochtechnologische Anwendungen

[76] Bei dem Verfahren nach einem weiteren Aspekt der Erfindung wird zur Herstellung einer wasserfreien Polierpaste – bestehend aus Poly-NCF-Poliersystem, Bindemittel und Konsistenzregler – das hier beispielhaft verwendete Polierkorn von 0,5 bis 1 µm zunächst in destilliertem Wasser vordispersiert.

[77] Zum Vordispersat wird anschließend als Konsistenzregler nano-partikuläres Aerosil® Ä300 (pyrogenes SiO<sub>2</sub>, mittlere Größe der Primärteilchen 7 nm, Quelle) hinzugegeben und dispergiert, ein Binde-

mittel – hier Polyethylenglycol mit Molekular-Kettenlänge PEG 400 – eingeührt und das destillierte Wasser quantitativ entfernt.

5 [78] Zur Herstellung des Vordispersgates werden 40 g des NCF-Poliersystems portionsweise in 2 kg Wasser eingeührt und zunächst für die Dauer von 2 h in einem Ultraschallbad (2 x 600 W/Per., 35 kHz) dispergiert. Zur agglomeratfreien Dispergierung wird das Dispergat über weitere 40 min mit einer Ultraschall-Durchflussapparatur (HF, Ausgangsleistung 200 W, 20 kHz) behandelt. Die Abtrennung etwaiger Verunreinigungen erfolgt mit einem Sieb der Maschenweite von 38 µm.

10 [79] Für die Herstellung von ca. 50 g Polierpaste werden 125 g des Vordispersgates in einem Becherglas vorgelegt, Aerosil® Å300 eingeührt und solange im Ultraschallbad dispergiert, bis mikroskopisch bei 100-facher Vergrößerung keine Aerosil-Flocken erkennbar sind – hier betrug die erforderliche Zeit 15 min. Anschließend werden 38,75 g Polyethylenglycol eingeührt, und das Wasser durch eine Temperierung auf bis zu 150 °C bis auf Rückstände von weniger als 0,5 % entfernt.

[80] Es ergibt sich in etwa folgende Zusammensetzung in Gewichtsprozent:

Poly-NCF (0,5 –bis1,0 µm):	5,5 %
Aerosil® Å300:	9,5 %
PEG 400:	85,0 %

15 [81] Zur Ermittlung der Leistungs-Charakteristika wurden Tests im Einsatzgebiet der ultrapräzisen Endpolitur von sphärischen Spezial-Stepper-Optiken aus CaF<sub>2</sub> mit Polierpads, versehen mit Spezialpechbeschichtung, durchgeführt.

[82] Versuchsvoraussetzung: Runde CaF<sub>2</sub>-Teile mit Radius 117 bispärisch, erhaben (Ober- und Unterpolutur) und Radius 208 hohl. Bei der Oberpolitur wurden nicht zu bearbeitende Seiten mit Schutzlack beschichtet.

20 [83] Versuchsablauf: Die zuvor angegebenen Spezialoptiken wurden in automatische Poliergeräte eingespannt. Dann wurden 1 bis 2 g Polierpaste aufgegeben, die Paste wurde zuerst von Hand mit dem später maschinell benutzten Pechpolierpad (Pad) verteilt. Nach der gleichmäßigen Verteilung der Paste wurde das Pad ebenfalls in das Poliergerät eingespannt. Nach einem Standardverfahren (kreisend und seitwärts bewegend, mit geringer Gewichtsauflage von 0,5 bis 1 kg) wurde anschließend die Spezialop-

tik ganzflächig bearbeitet. In identischem Ablauf wurden Versuche mit Wettbewerbs-Standard-Produkten als Vergleichsbasis durchgeführt.

[84] Im Ergebnis wurde mit der neuen Paste ein mittlerer Abtrag von etwa 950 nm erreicht, im Vergleich zu 400 bis 600 nm bei Standard-Pasten. Die erreichte Mikrorauhigkeiten betrugen bei 2,5 mal etwa 0,1 bis 0,12 nm. Dies ist in Figur 18 wiedergegeben. Im Vergleich hierzu erreichte die Standard-Paste etwa 0,2 bis 0,6 nm, was Figur 19 verdeutlicht. Bei 20 mal wurden mit der hier vorgeschlagenen Paste etwa 0,4 bis 0,6 nm erreicht. Die Standard-Paste lieferte etwa 0,9 bis 1,5 nm.

[85] Der Kratzerstatus lieferte bei der neuen Paste nach Messung im Dunkelfeldmikroskop bei 200-facher Vergrößerung praktisch keine bzw. an der Grenze der Sichtbarkeit liegende Kratzer (vgl. hierzu Figur 18). Bei der Standard-Paste waren deutliche Kratzer sichtbar. Dies ist in Figur 19 wiedergegeben.

[86] Im Vergleich mit anderen getesteten Pasten auf Diamantbasis der 0,5 µm-Klasse stellt die getestete neue Paste mit Poly-NCF somit ein bislang nicht erreichtes und nicht bekanntes Optimum hinsichtlich Abtragsleistung, Mikrorauhigkeit, Pässeausbildung und Verkratzung der Topographie dar. Auch hat sich gezeigt, dass mit dieser neuen Paste eine Trocknungskompensation durch Zugabe von Wasser möglich ist, ohne damit kratzende Agglomerate zu provozieren.

[87] Dadurch ist eine Verwendung dieser Paste ebenfalls für die Herstellung von Spezial-Stepperoptiken im Bereich Lithographie auch unterhalb der von der Industrie angestrebten 157-er Nanotechnologie möglich. Figur 20 zeigt entsprechend zusammengefasste Vergleichsergebnisse.

[88] In Figur 21 sind weitere Leistungsergebnisse mit Poly-NCF-Compounds bei der Oberflächenbearbeitung hochtechnologischer Materialien und Elemente, vorrangig der Hochleistungselektronik und -optik dargestellt.



## Patentansprüche:

1. Nano-partikuläre Kohlenstoffstruktur (NCF) mit Kohlenstoff in hexagonaler und/oder kubischer Modifikation sowie mit Sauerstoff, Wasserstoff, Stickstoff und unverbrennbaren Beimengungen, welche nano-partikuläre, fullerene Formationen aufweisen und stabilisiert sind.
2. NCF nach Anspruch 1, **gekennzeichnet durch** eine Zusammensetzung seiner Elemente in Massenprozent wie folgt: Kohlenstoff 86,0 bis 98,0 %, Sauerstoff 1,0 bis 6,0 %, Wasserstoff 0,5 bis 1,0 %, Stickstoff 0,5 bis 2,0 % und unverbrennbare Beimengungen 0 bis 2,0 %.
3. NCF nach Anspruch 1 oder 2, **dadurch gekennzeichnet, dass** die Materialteilchen und Cluster ogivale Formen aufweisen, auf deren innerer und äußerer Oberfläche sich offene Poren lokalisieren.
4. NCF nach einem der vorhergehenden Ansprüche, **dadurch gekennzeichnet, dass** offene Poren Abmaße von 12 bis 100 Å nach BET aufweisen.
5. NCF nach einem der vorhergehenden Ansprüche, **gekennzeichnet durch** eine Volumenadsorption von mindestens 300 J/g, bevorzugt von mindestens 500 J/g, und bis 700 J/g.
6. NCF nach einem der vorhergehenden Ansprüche, **gekennzeichnet durch** einen Brechungsindex (refraction index) von über 2,55.
7. NCF nach einem der vorhergehenden Ansprüche, **gekennzeichnet durch** eine Absorptionsgrenze des Materials im UV-Bereich von 220 bis über 300 nm sowie im nahen Infrarot-Bereich von mehr als etwa 2810 cm<sup>-1</sup>.
8. NCF nach einem der vorhergehenden Ansprüche, **dadurch gekennzeichnet, dass** es als Pulver mit dunkelgrauer Farbe vorliegt.
9. NCF nach Anspruch 8, **dadurch gekennzeichnet, dass** sein spezifisches Gewicht im unverdichteten Zustand zwischen etwa 2,3 und 3,0 g/cm<sup>3</sup> liegt.
10. NCF nach einem der vorhergehenden Ansprüche, **dadurch gekennzeichnet, dass** es bei einer Röntgenphasenanalyse nur einen einzigen Phasen-Peak liefert, nämlich den der kubischen Modifikation des Kohlenstoffs (Diamant).
11. NCF nach einem der vorhergehenden Ansprüche, **dadurch gekennzeichnet, dass** eine Formierung aus Zentral-Kristallen der kubischen Gitterphase von einer Käfighülle aus Kohlenstoffen umgeben ist, wobei die Käfighülle aus einer regelmäßigen Anordnung von Fünfecken und Sechsecken besteht.
12. NCF nach einem der vorhergehenden Ansprüche, **dadurch gekennzeichnet, dass** die Monokristalle farblos erscheinen.

13. NCF nach einem der vorhergehenden Ansprüche, **gekennzeichnet durch** optische Isotropie.
14. Fullerene-Shell („onion-like carbon“), bei welcher etwa 1800 bis 2000 Kohlenstoffatome containerartig einen Nano-Kern mit kubischer Kristallstruktur und etwa 900 bis 1000 Oberflächenatomen umfassen, bevorzugt NCF nach einem der vorhergehenden Ansprüche aufweisend.
15. Verfahren zum Herstellen von Fullerene-Shells, **dadurch gekennzeichnet, dass** NCF nach einem der Ansprüche 1 bis 13 in Vakuum oder in Inertgasatmosphäre, beispielsweise in Argon-Atmosphäre, thermisch behandelt wird.
16. Verfahren zum Herstellen von NCF, insbesondere von NCF nach einem der Ansprüche 1 bis 13, **dadurch gekennzeichnet, dass** die Ausgangsstoffe Kohlenstoff, Sauerstoff, Wasserstoff, Stickstoff und unverbrennbare Beimengungen von einem organischen Energieträger mit negativer Sauerstoffbilanz in einem geschlossenen Volumen in Inertgas-Atmosphäre unter einem atomaren Wasserstoffplasma umgesetzt werden und das Reaktionsprodukt anschließend abgekühlt und stabilisiert wird.
17. Verfahren zum Herstellen von NCF mit vorwiegend quasi-monokristalliner Morphologie, insbesondere nach einem der Ansprüche 1 bis 13, **dadurch gekennzeichnet, dass** eine Stoffkombination von organischen Energieträgern, vorrangig Gemische von  $C_7H_5N_3O_6$  (Sauerstoffwert: -73,9 %) und Cyclotrimethylentrinitramin (Sauerstoffwert: -21,6 %) mit einer Masse von 15 kg in einer Enklaven-Kammer mit einem freien Raumvolumen von  $100\text{ m}^3$  mit negativer Sauerstoff-Bilanz zur chemischen Umsetzung gebracht wird.
18. Verfahren nach Anspruch 17, **dadurch gekennzeichnet, dass** eine kurzzeit-physikalische Umbildung der hexagonalen Kohlenstoff-Kristallgitter-Struktur in die kubische Struktur (Diamantgitter) sowie in die fullerene Raumgitter-Struktur (Käfigstruktur mit  $<<C_{240}$ ) nach dem Martensen-Mechanismus durch Realisieren einer topologischen Temperatur-Plattform von zwischen 3000 und 4500 °C, durch Umsetzen eines lokalen Druckniveaus von mindestens 4,5 Gpa, durch Formieren dynamischer gegenläufiger Stoßwellen in Bereichen von mehr als 100000 atm sowie durch eine Begrenzung der kurzzeit-physikalischen Reaktionszeit der chemischen Umsetzung auf weniger als  $7,5 \times 10^{-6}\text{ s}$  erfolgt.
19. Verfahren nach Anspruch 17 oder 18, **dadurch gekennzeichnet, dass** für den Zeitraum des chemischen Reaktionsverlaufs ein atomares Wasserstoff-Plasma formiert wird, um eine Regraphitisierung der erzeugten Fullerene-Strukturen zu verhindern.
20. Verfahren zum Herstellen von NCF mit polykristalliner morphologischer Struktur (Poly-NCF, PNCF), insbesondere mit NCF nach einem der Ansprüche 1 bis 13, **dadurch gekennzeichnet, dass** nach dem Herstellen des NCF mit vorwiegend quasi-monokristalliner Morphologie dieses mit Hilfe eines CVD-gestützten Sinterprozesses in einem Vakuumsystem bei Drücken zwischen 8 und 10,5 GPa und Temperaturen von 1000 bis 1500 °C behandelt und anschließend mechanisch zerkleinert werden.

21. Verfahren nach Anspruch 20, ***dadurch gekennzeichnet, dass*** ein kohlenstoffhaltiges Trägergas, bevorzugt Methan, in das Raumporensystem der NCF-Strukturen diffundiert wird.
22. Verfahren zum Herstellen eines Nano-Partikel-kombinierten NCF-Compounds, ***dadurch gekennzeichnet, dass*** die Nano-Partikel zunächst in einem polaren und gering viskosen Lösungsmittel vordispersiert werden und zum Herstellen des Compounds die Vordispersate mit einem Fluid kombiniert werden, welches dasselbe Lösungsmittel aufweist.
23. Lacksystem, insbesondere hergestellt nach Anspruch 22, ***gekennzeichnet durch*** eine Modifizierung mit NCF-Partikeln nach einem der Ansprüche 1 bis 13.
24. Verwendung von NCF-Partikeln, insbesondere nach einem der Ansprüche 1 bis 13, zum Modifizieren der mechanischen Eigenschaften von Lacken (Coatings), insbesondere von 2k-PUR-Matt-Lacksystemen.
25. Gleitlacksystem (Trocken-Schmiermittel) mit NCF, insbesondere mit NCF nach einem der Ansprüche 1 bis 13.
26. Verwendung von NCF, insbesondere nach einem der Ansprüche 1 bis 13, zum Herstellen eines Nano-Partikel-kombinierten Gleitlacksystems zur Verbesserung der Gleiteigenschaften des Gleitlacksystems.
27. Nano-Suspension (Nano-Compound) auf der Basis von Poly-NCF mit folgender Zusammensetzung (Angaben in Gewichtsprozent): Poly-NCF etwa 1,4 %, destilliertes Wasser etwa 95 %, Aerosil® Ä300 etwa 3,6 %, Polylidon etwa 0,007 % und NaOH (s) 0,012 % +/- 0,004 %.
28. Verwendung einer wässrigen Nanosuspension auf der Basis von Poly-NCF, insbesondere von Poly-NCF nach Anspruch 27, für das Hochpräzisions-Polishing.
29. Wasserlösliche Poly-NCF-Paste (wasserfrei) mit folgender stoffmäßiger Zusammensetzung (Angaben in Gewichtsprozent): Poly-NCF etwa 5,5 %, Aerosil® Ä300 etwa 9,5 % und PEG 400 etwa 85,0 %.
30. Verwendung einer wasserlöslichen Poly-NCF-Paste (wasserfrei), insbesondere einer Paste nach Anspruch 29, für das Hochpräzisions-Polishing, bevorzugt für die Endpolitur von sphärischen Spezial-Stepper-Optiken aus CaF<sub>2</sub> mit Polierpads, welche mit einer speziellen Pechbeschichtung versehen sind.

Fig. 1

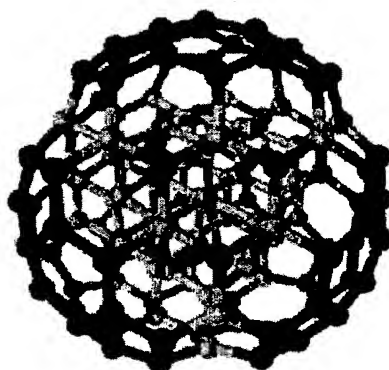


Fig. 2

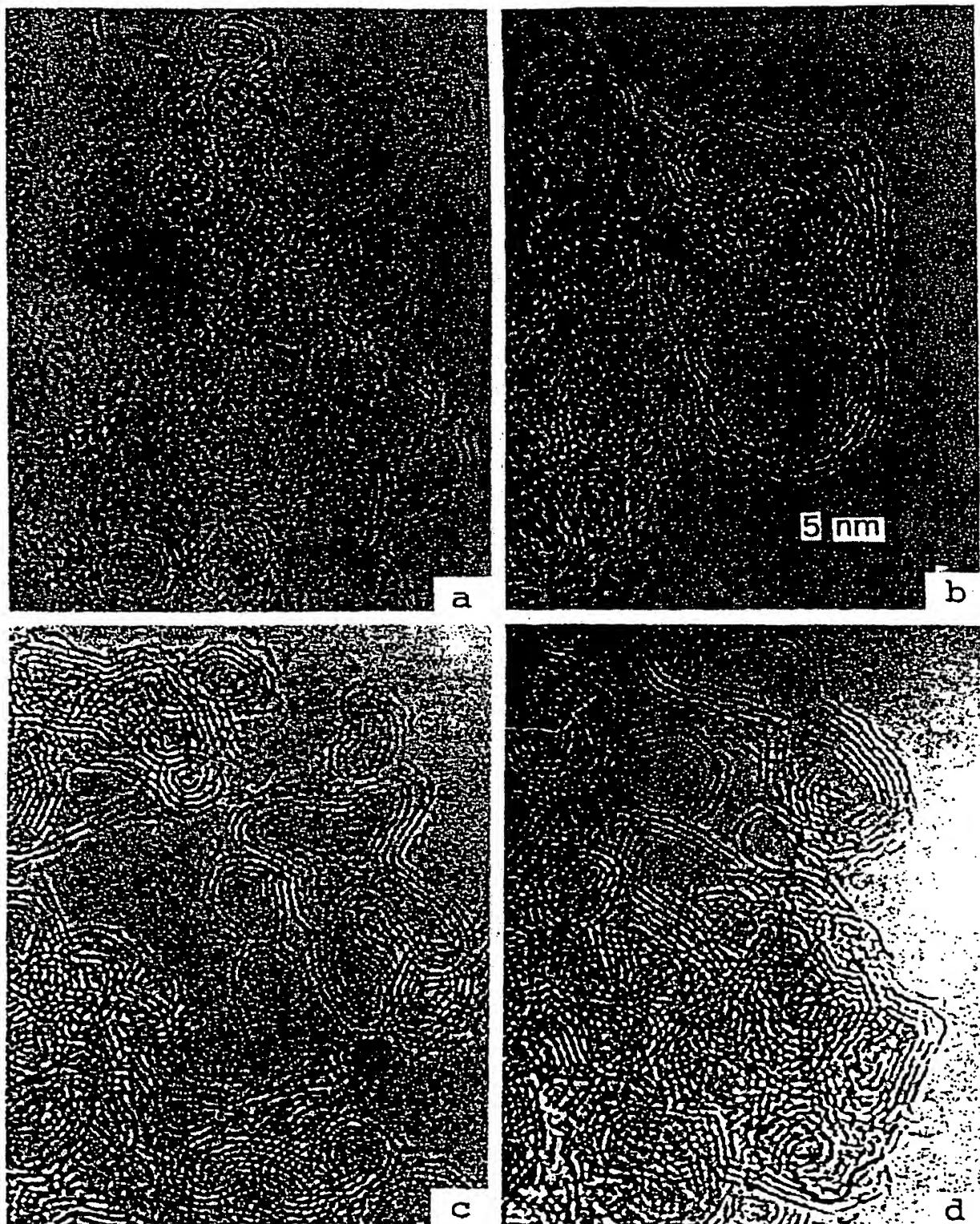


Fig. 3

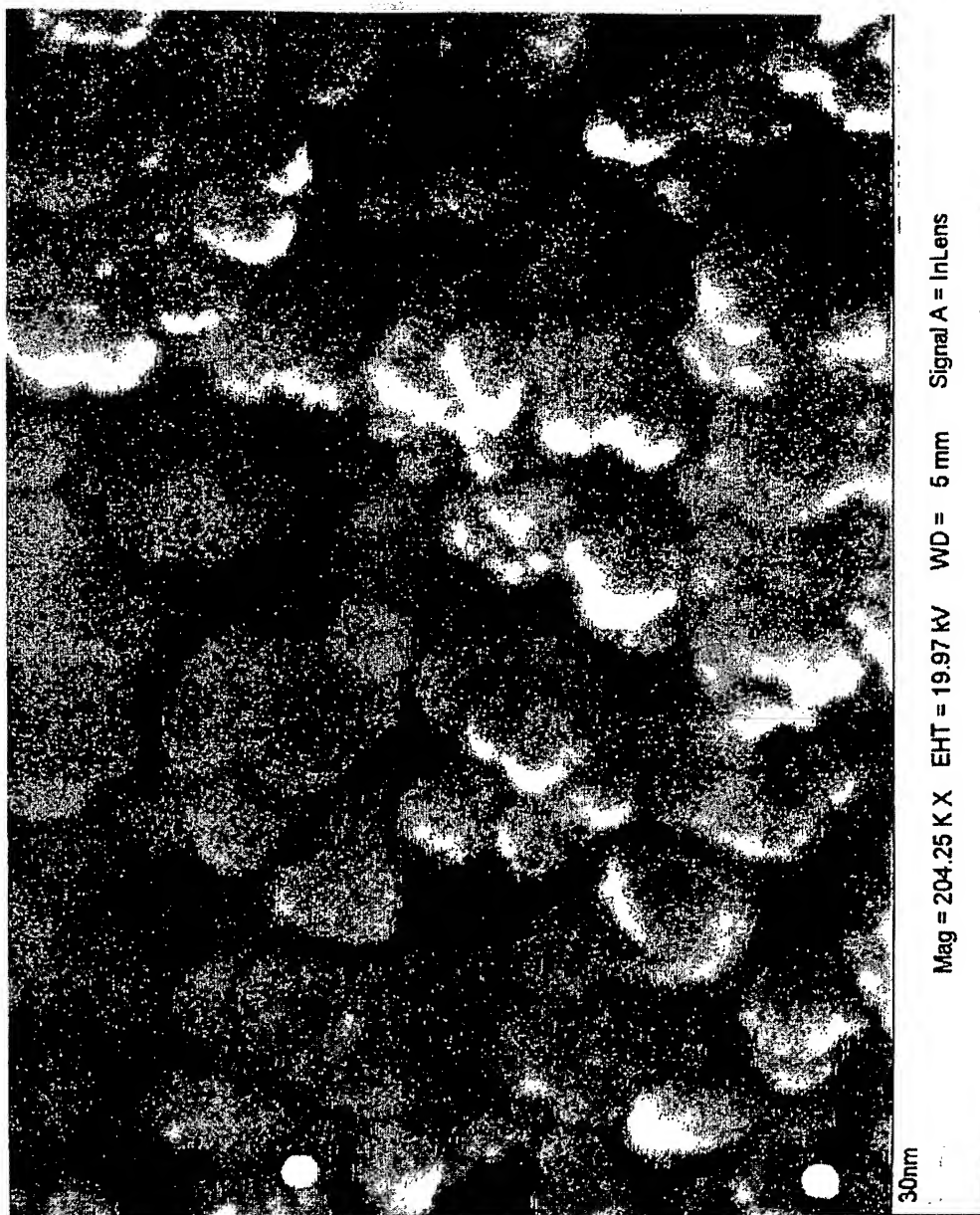


Fig. 4

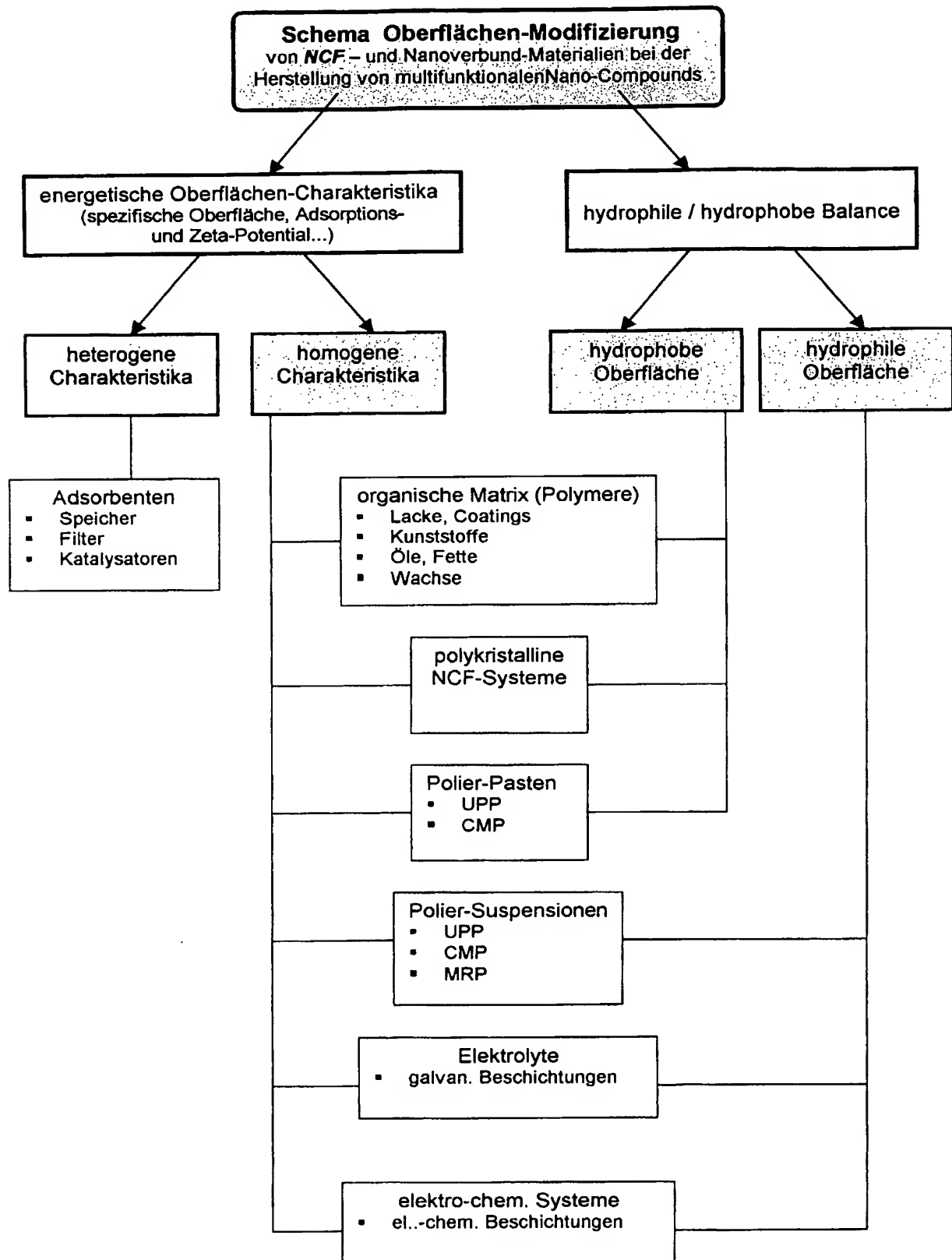


Fig. 5

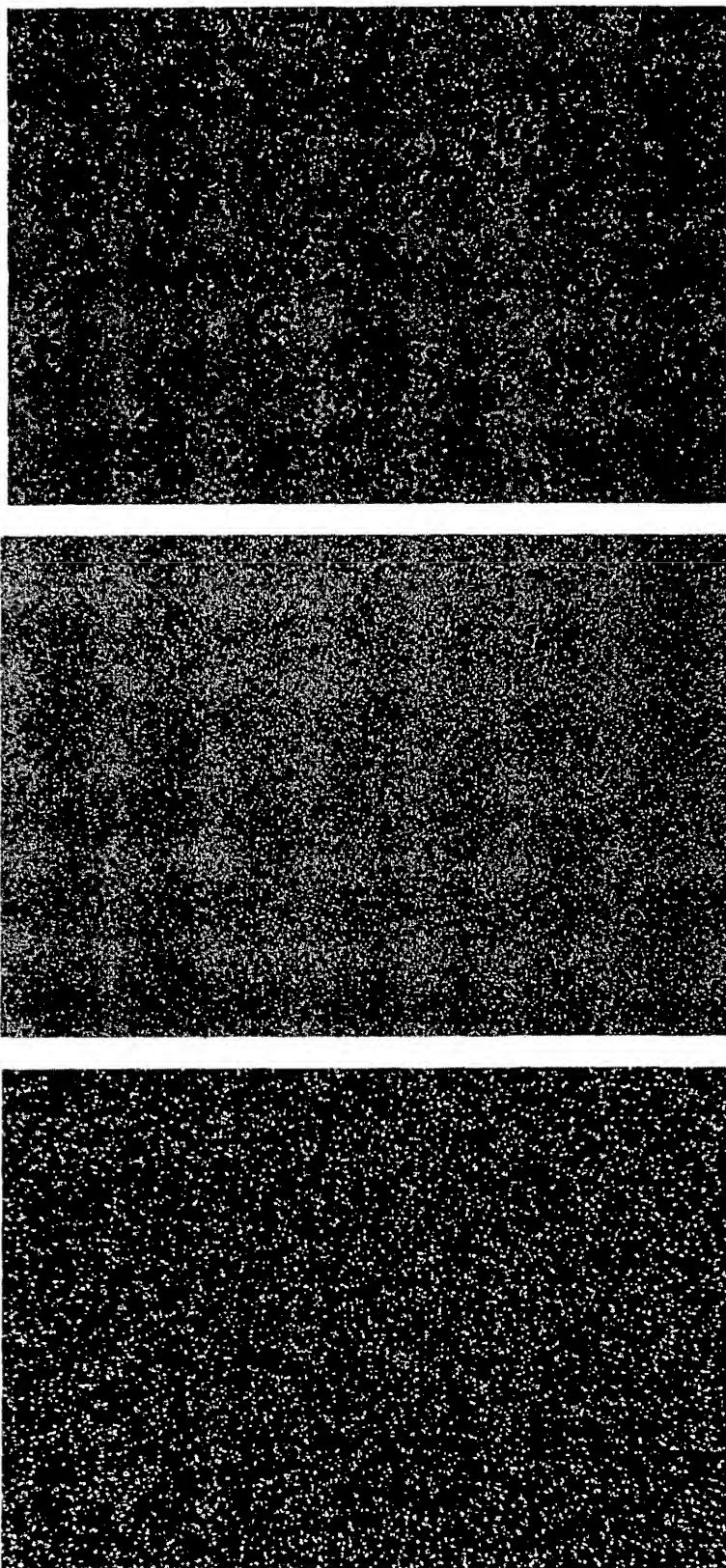




Fig. 6

<b>Eigenschaften</b>		
<b>Nano-Carbon-Fullerene (NCF)</b>		
Morphologie / Modifikation	$sp^3=100\%$ [(111)50/37=2 theta] // $sp^2$	
Kristallform	Kristallit/sphärisch $\gg C_{240}$	
Körnungsbereich, norm.	0,005 - >50	$\mu m$
Cluster-Festigkeit	24,8 - 35,9	N
Dichte, pykrometrische	3.40	$g / cm^3$
Oberfläche, spezifische	120 - 530	$m^2 / g$
Magnetisierbarkeit, mittlere	$< 4 \times 10^{-8}$	$m^3 / kg$
Scratch hardness (Mohs Scale)	10	M
Anteile, flüchtige	< 3	%
Zeta-Potential	(-)20 - (+)10	mv
<b>Optische Charakteristika:</b>		
Refractive index (Hg green 546,1 nm)	2,5563	
C-line (656,28 nm)	>2,4099	
D-line (589,29 nm)	>2,41726	
F-line (486,13 nm)	>2,43554	
Near cut-off (UV at 226,5 nm)	2,7151	
Brewster Winkel (at D-line)	67,53	grad (°)
Reflection (normal incidence)	0,17	
Optical transparency (225 nm - 2,5 $\mu m$ )	> 6,0	$\mu m$
Visible region	400 - 700	nm
<b>Produktcharakteristika:</b>		
Wärmeleitfähigkeit	1300 - 2100	W / mK
Thermoeffusivität	7.0 - 11.0	$cm^2 / s$
Ausdehnungskoeffizient, linear	$1.1-3.6 \times 10^{-6}$	/ K
Oxidationstemperatur, freie Atmosphäre	350 - 420	°C
Graphitisierungstemperatur, Vakuum	1100 - 1250	°C
<b>Physik.-chem. Thermodyn. Charakteristika:</b>		
P / $P_s (=0,05/0,7)$	$\gg 3.3 / 0.65$	J / $m^2$ at
V(micropore)	0.000294	$cm^3/g$
A(micropore)	24.377	$cm^2/g$
delta Cs	3000	mJ / mole x g
Vpor/Dpor	1,8/30	$cm^3 g^{-1}/nm$
d(P/ $P_s$ )	<735	J / g
Vads./d	500/1,5	$cm^3 g^{-1}/nm$

Fig. 7



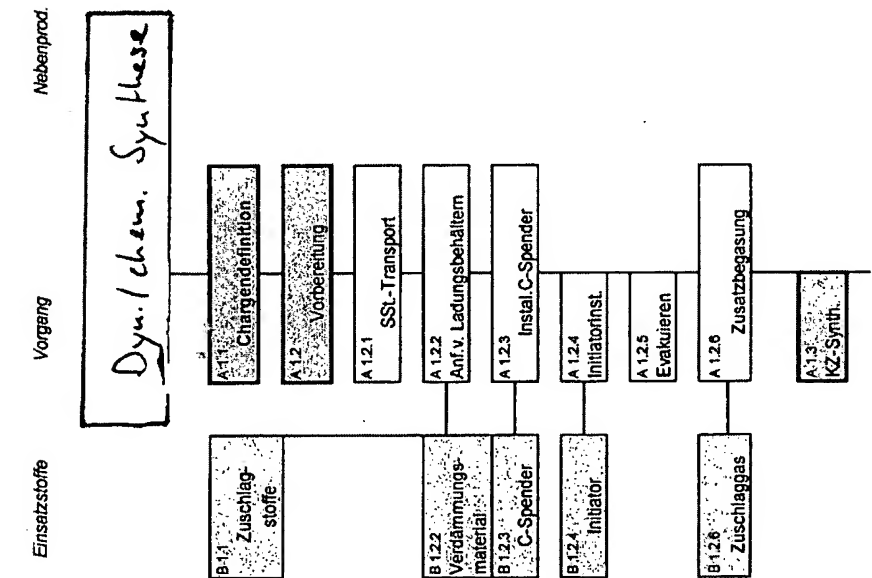
Fig. 8/1

# Produktionstechnologie, beispielhaft

Technologisches Fluß-Schema

Nano-Carbon-Fullerene ↔ NCF

cpa1.xls



technische Schritte			Betriebsmittel / Hilfsstoffe		
Objekt	Zeit [h]	Personal	AZ [h]	Objekt	Spezifizierung
					bezogen auf mittl. Durchsätze
				B 1.1	Zuschl.st
A 1.2.1	17.0 / 6.0	2 bzw. 1	17.0 / 6.0		...
A 1.2.2 bis A 1.3	2.0	2	2.0	B 1.2.2	Diesel / Spesen
				B 1.2.3	Verd.mat
				B 1.2.4	SSbw150
					...
				B 1.2.6	N <sub>2</sub> (techn)
					5 Fl.
					31.50

Fig. 8/2

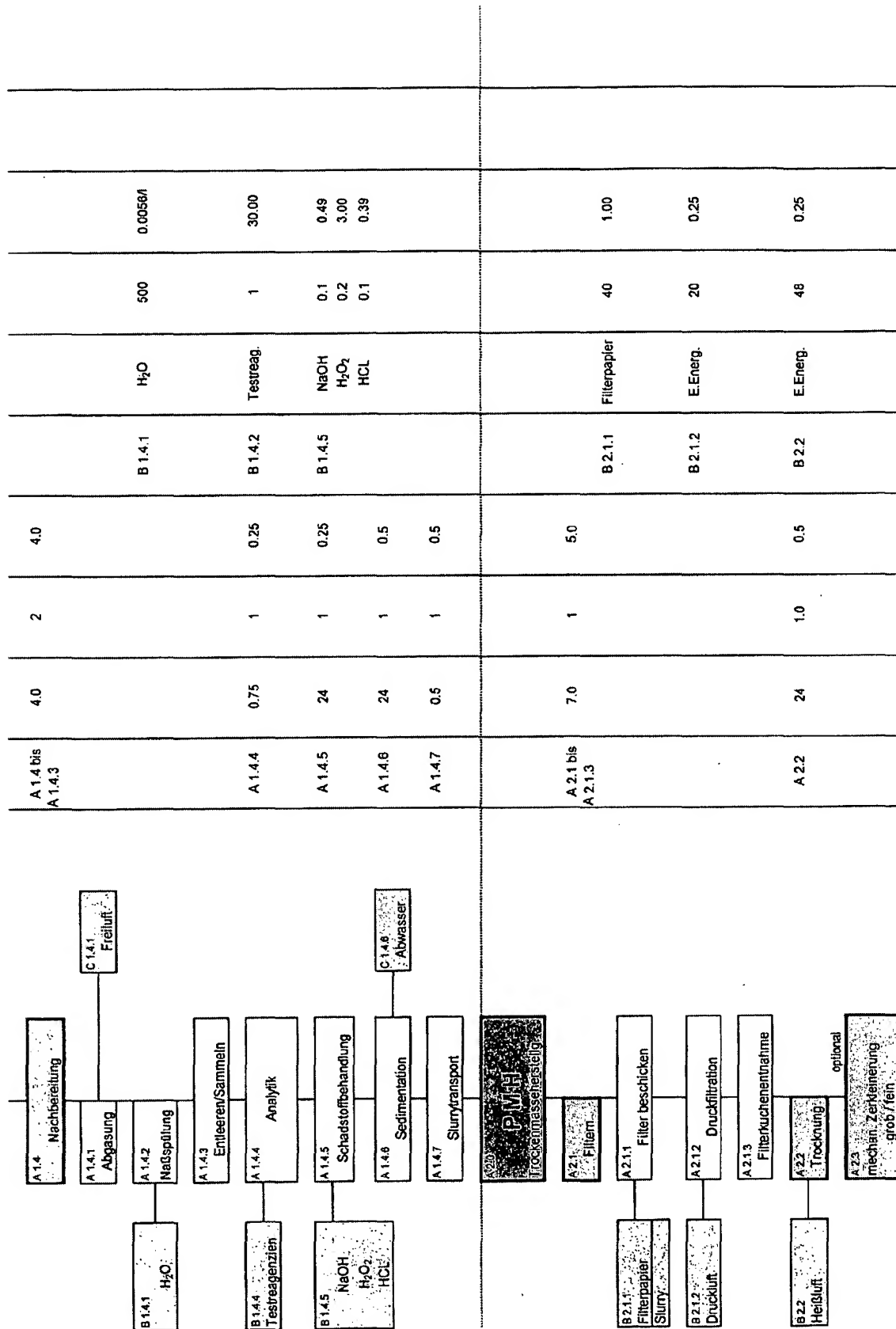


Fig. 8/3

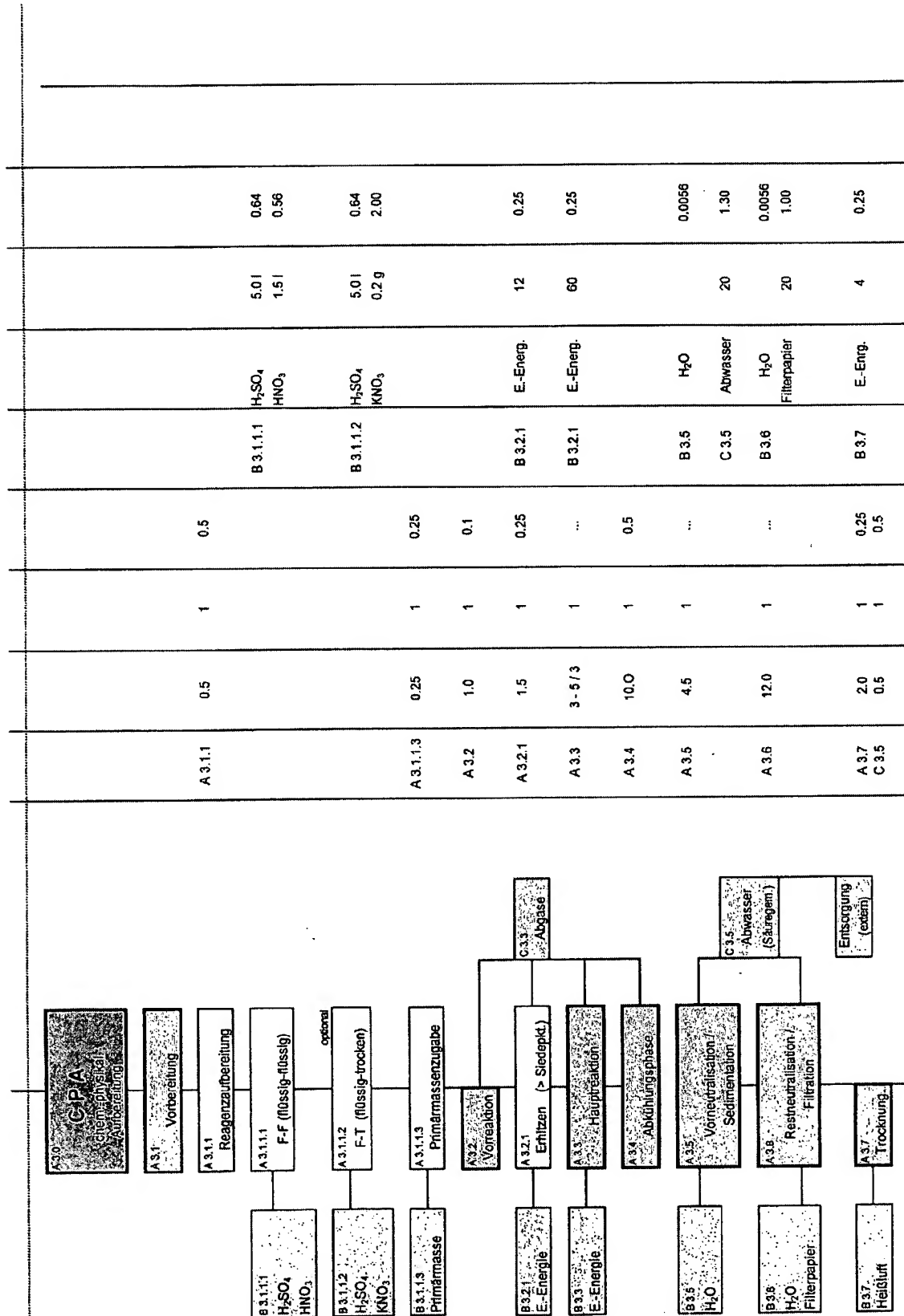


Fig. 8/4

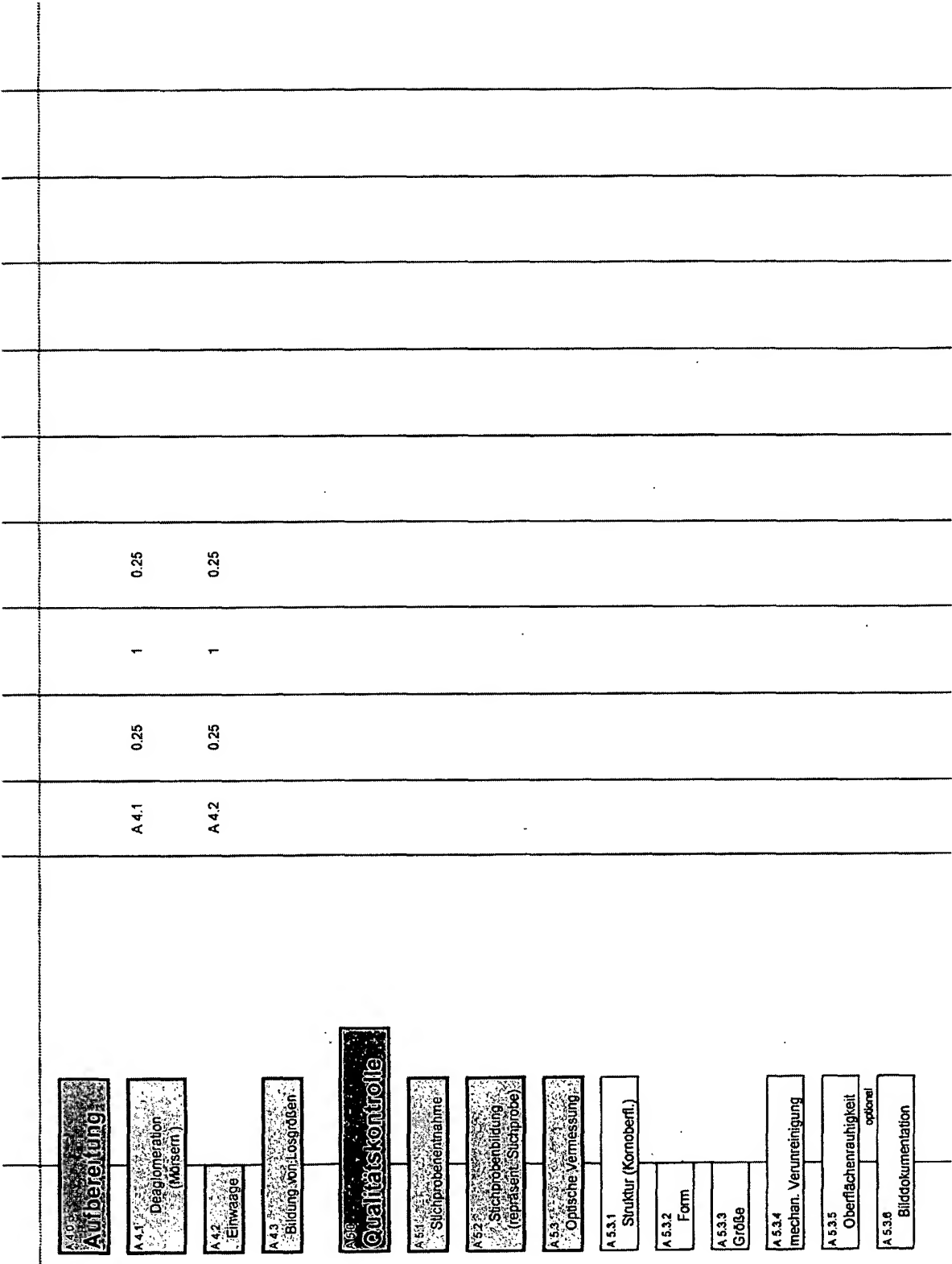


Fig. 8/5

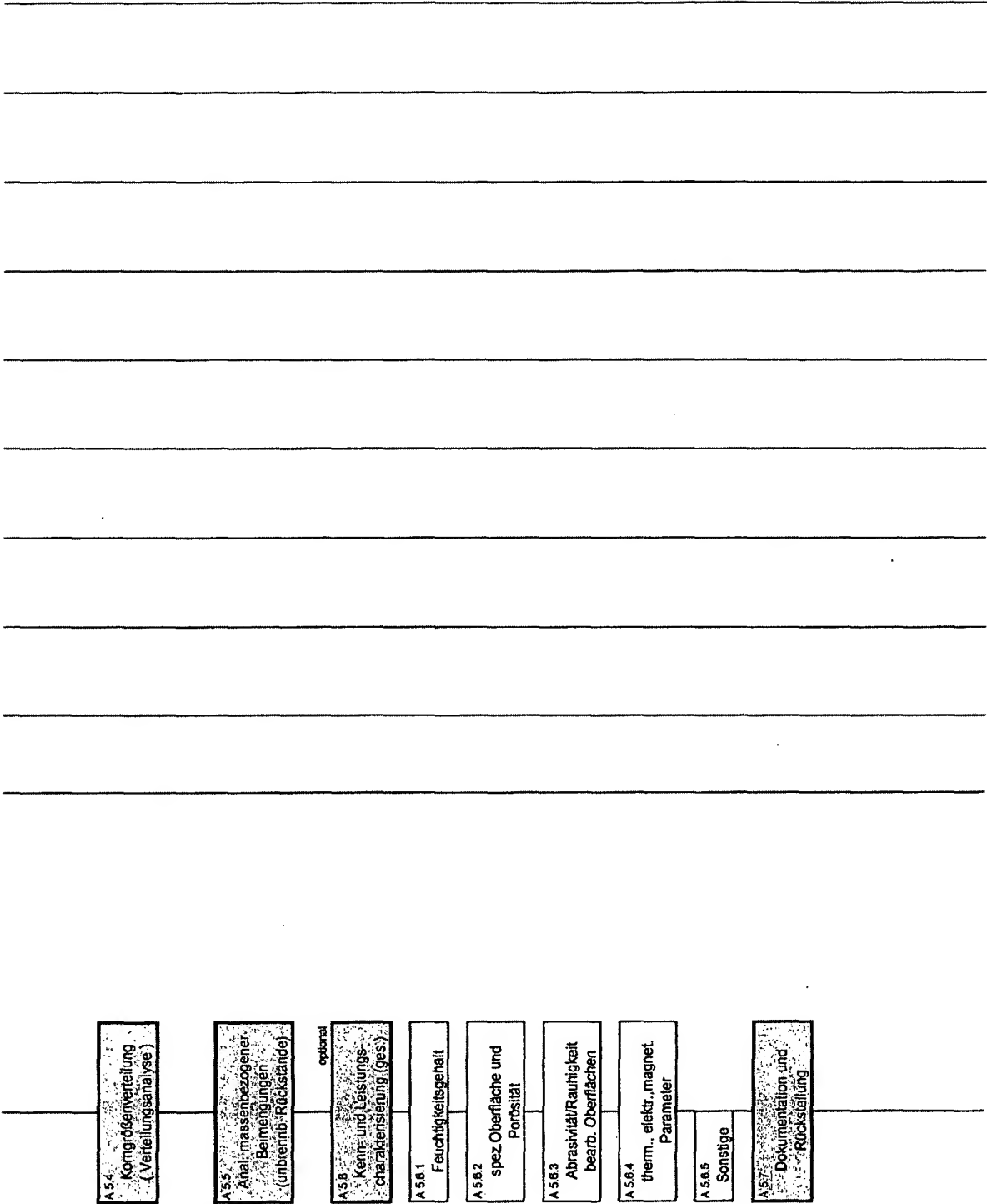


Fig. 8/6

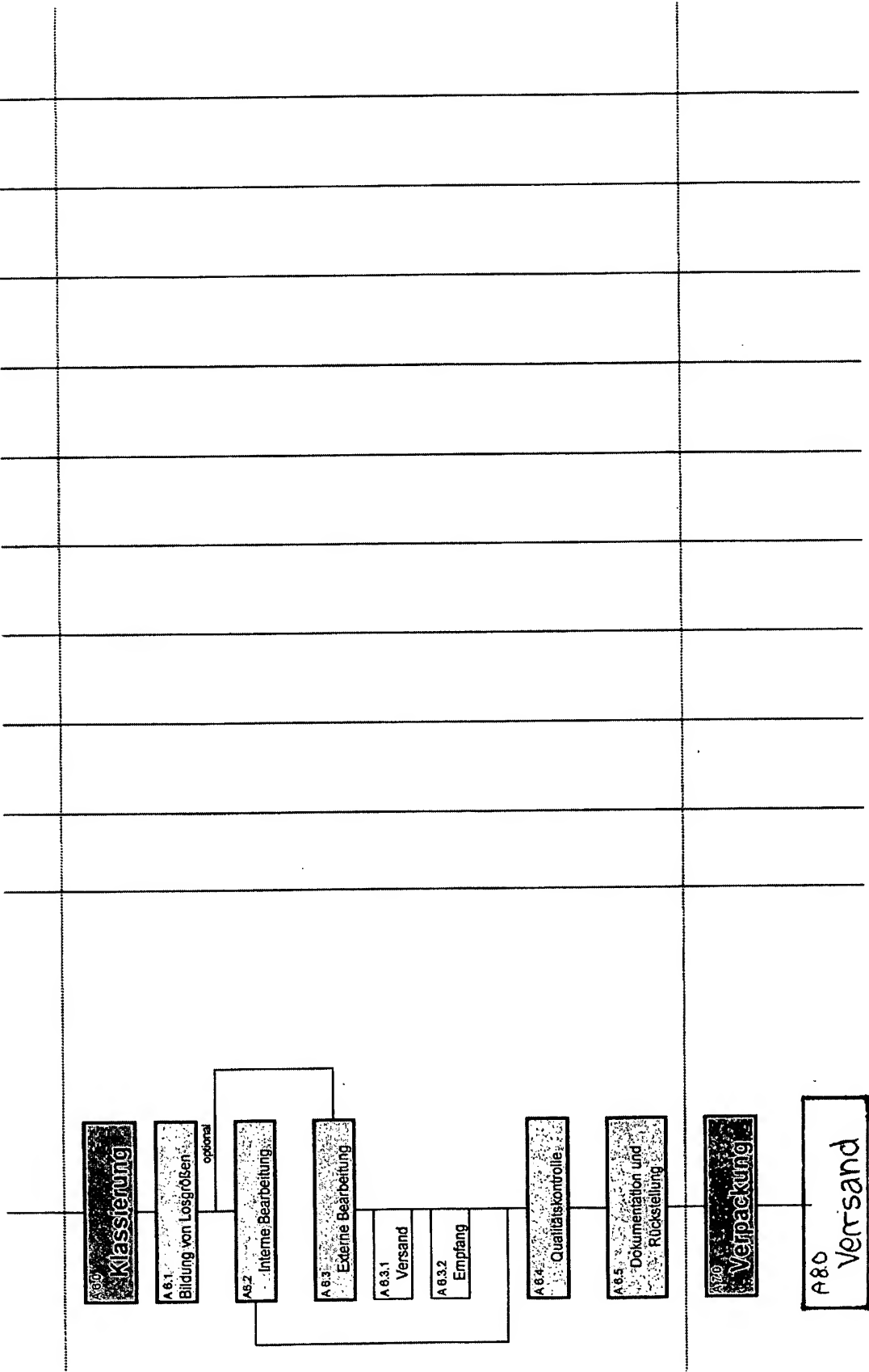




Fig. 9

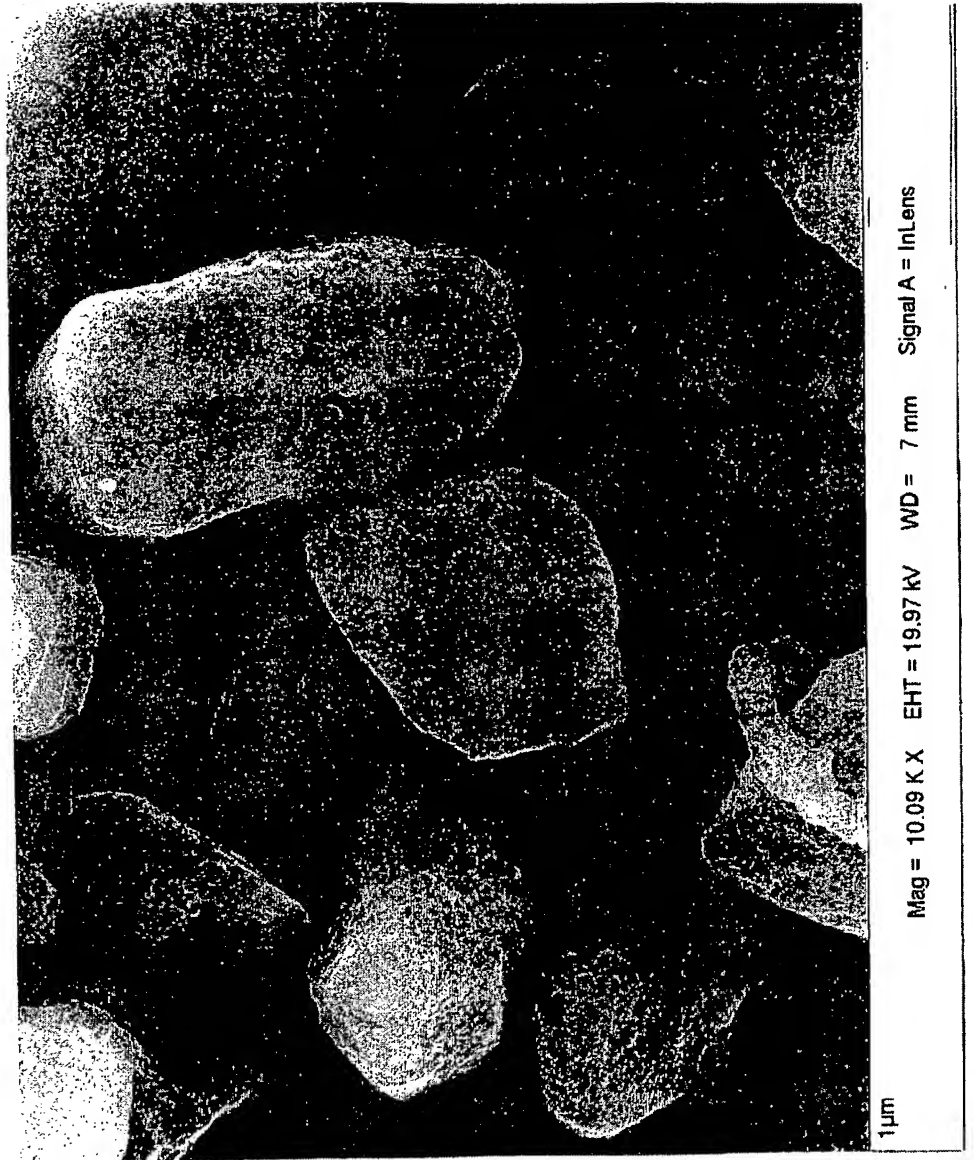


Fig. 10

## Produktions-Technologie Poly-NCF

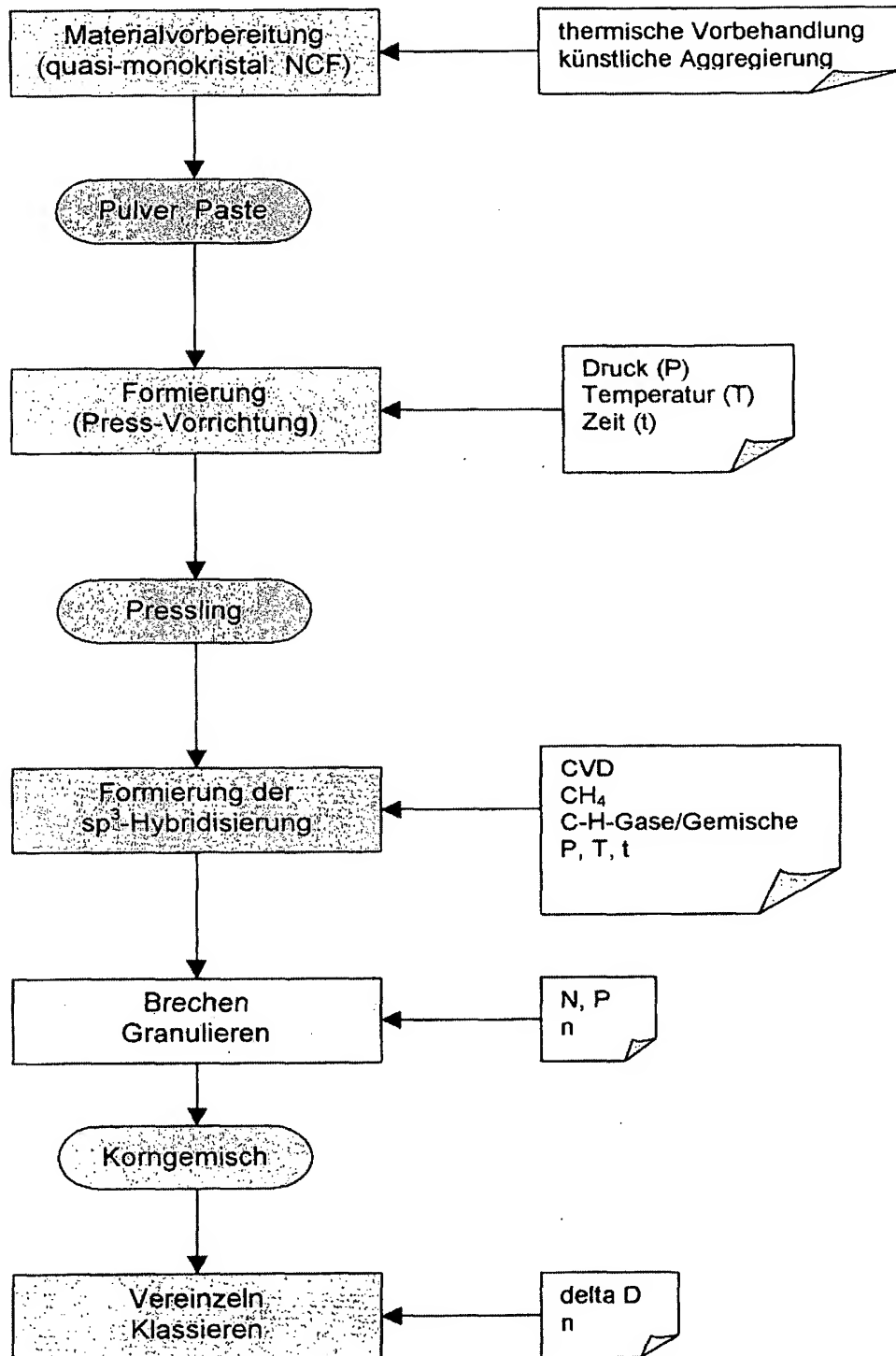
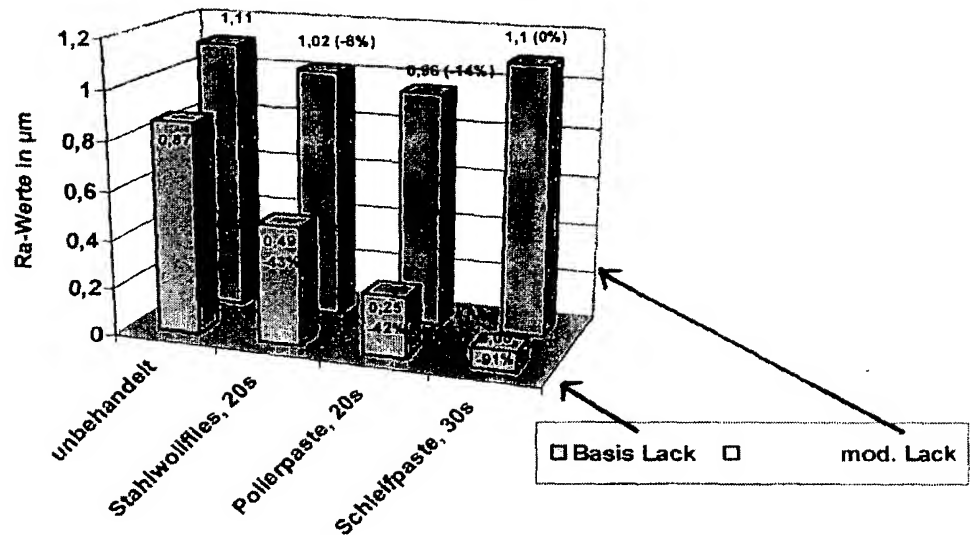
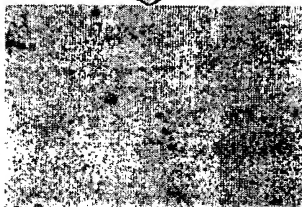
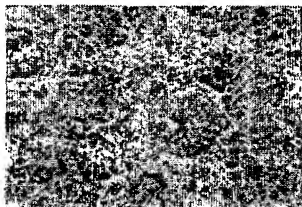


Fig. 11



**Abriebfestigkeit (Rauheitsmessungen) NCF- modifizierter 2K-PUR-Mattlacke**

**Basis 2K PUR – Mattlack**



nach 30 sec. Politur

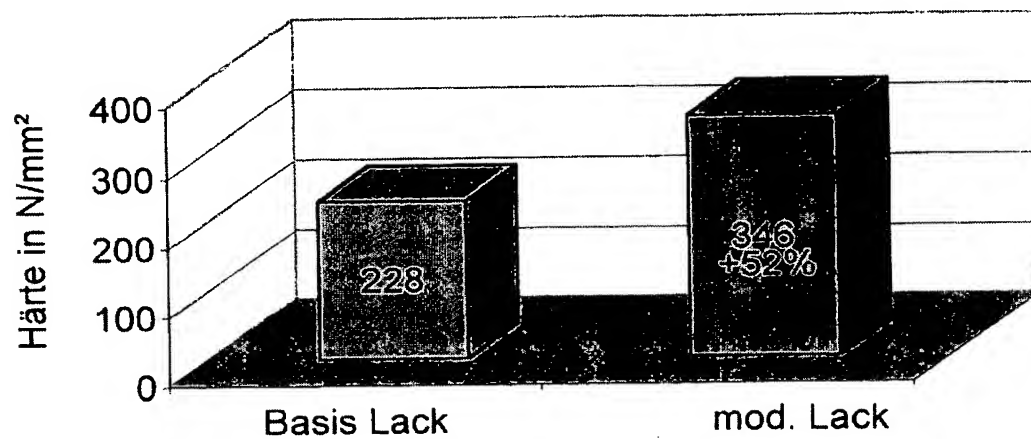
**NCF- mod. PUR – Mattlack**



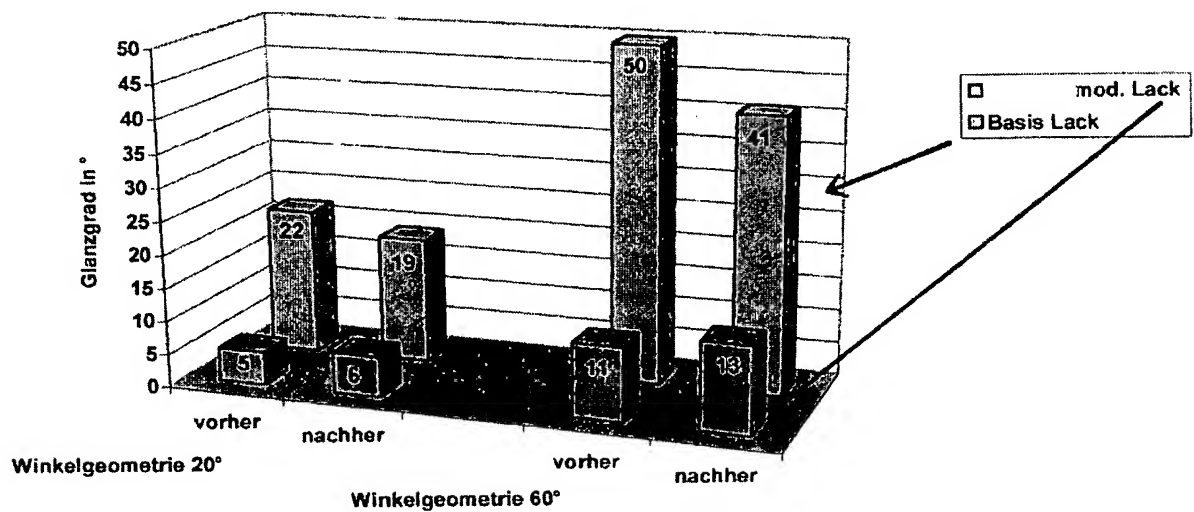
nach 30 sec. Politur

**Aufnahmen der Oberflächenstruktur (Textur) von normalen und modifizierten Mattlacken vor und nach der Politur mit Diamant-Paste**

Fig. 12

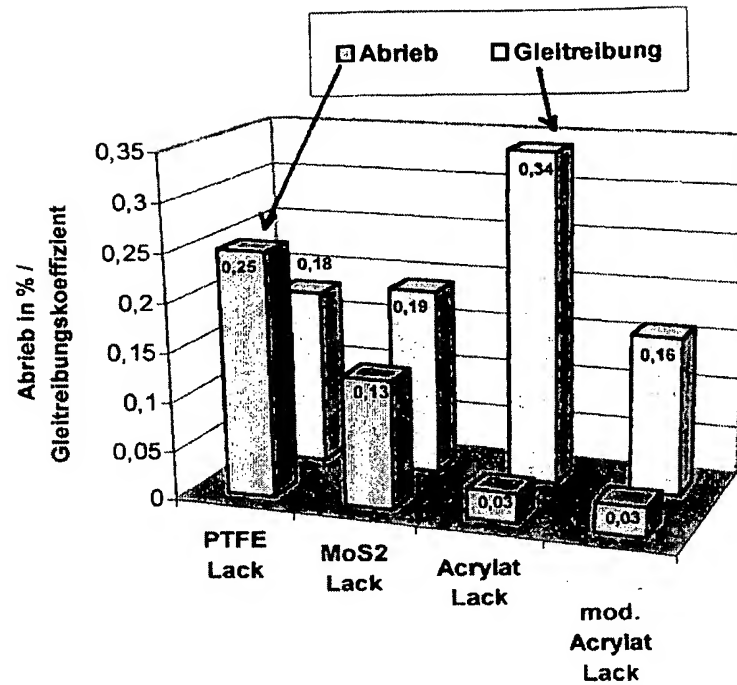


**Vergleich der Martenshärte von Basis - (Referenz)-Mattlack und NCF-modifiziertem Lack**

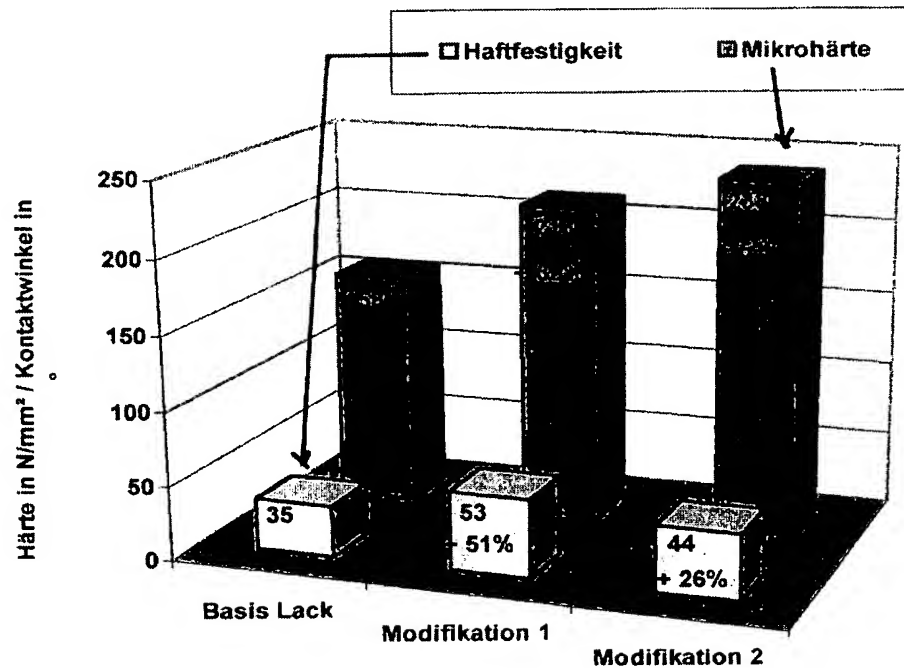


**Scheuerbeständigkeit über Glanzgradbestimmung von Matt-Lacken im Vergleich**

Fig. 13



**Abriebfestigkeit (Taber Abraser Test) und Gleitreibungswerte ausgewählter Lacksysteme**



**Mikrohärte (HV) und Haftfestigkeit (Kontaktwinkel) von NC-Lacken**

Fig. 14

# Standardversuch zur Bewertung der Poliermittel

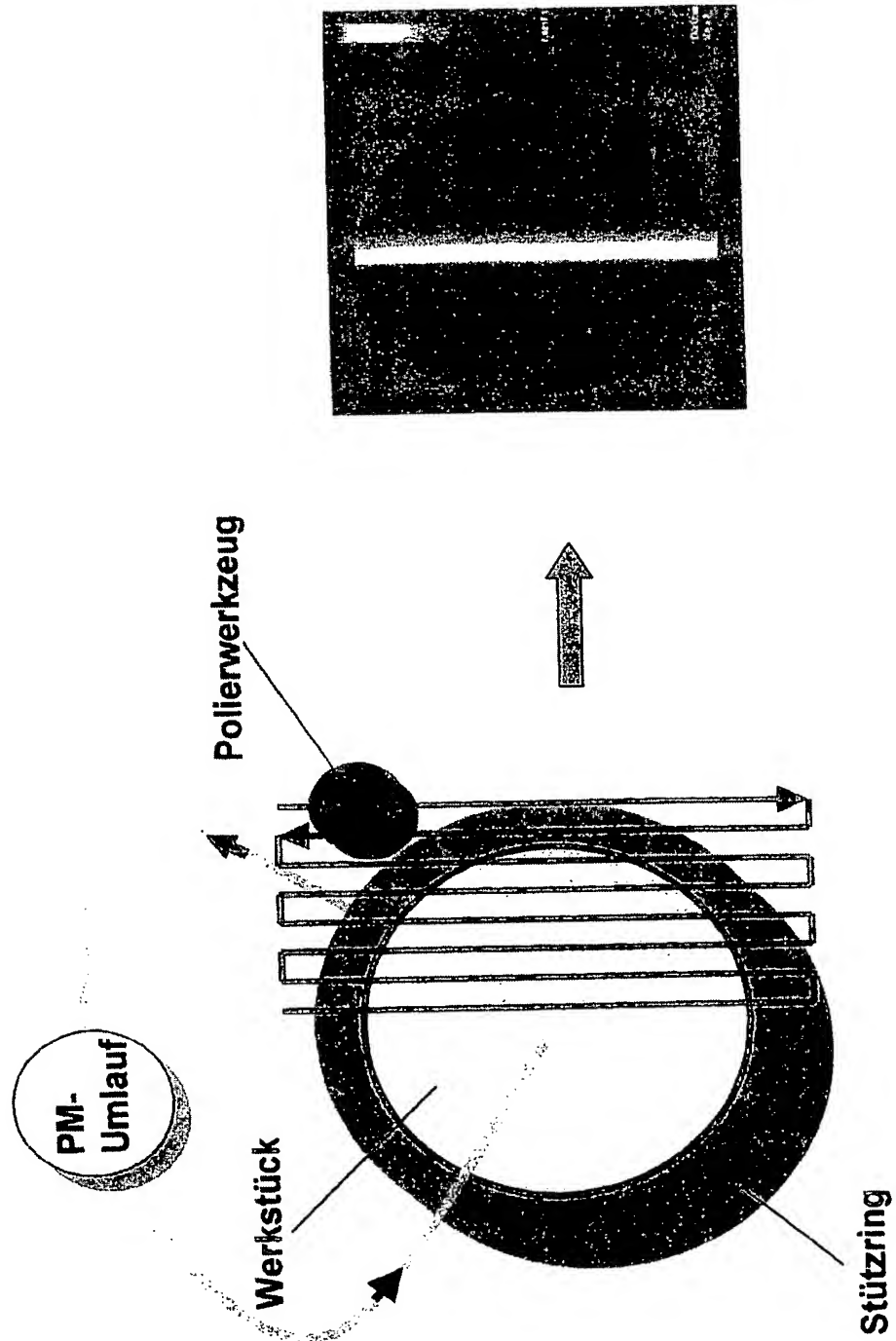


Fig. 15

Mikrorauhigkeit 2,5x: 1,1- 1,2 nm (zum Vergleich Standard- D0,25: 1,3 -1,7 nm)  
Mikrorauhigkeit 20x: 0,6 - 0,7 nm (zum Vergleich Standard- D0,25: 1,1-1,7 nm)

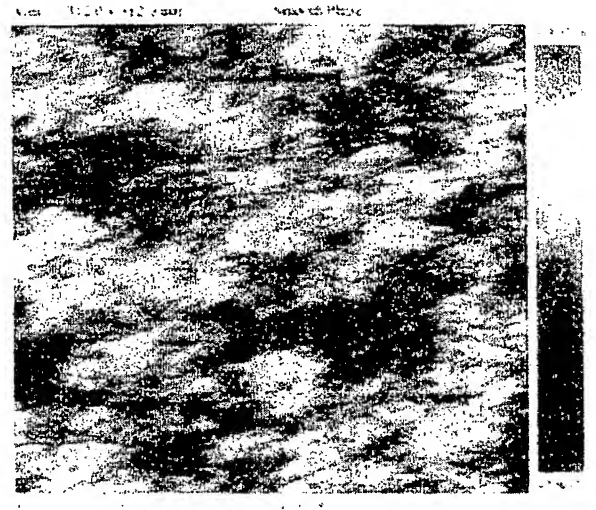
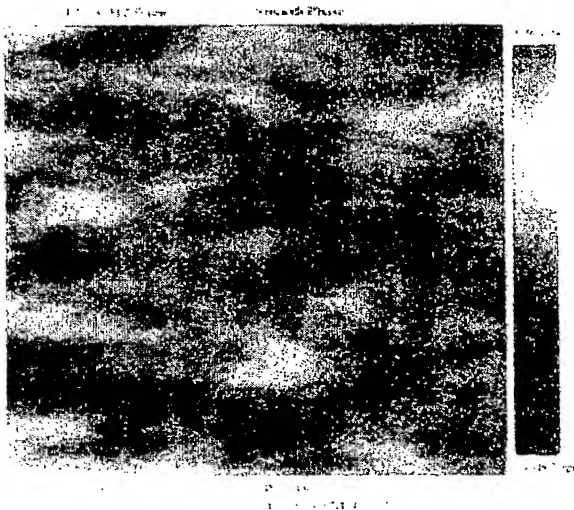


Fig. 16

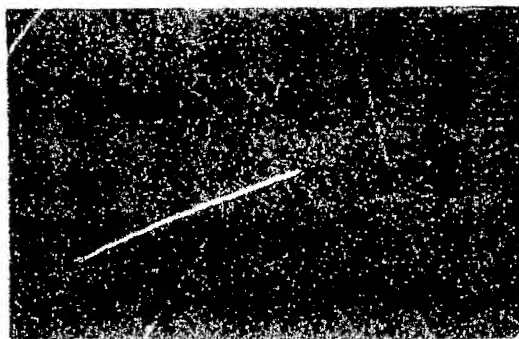
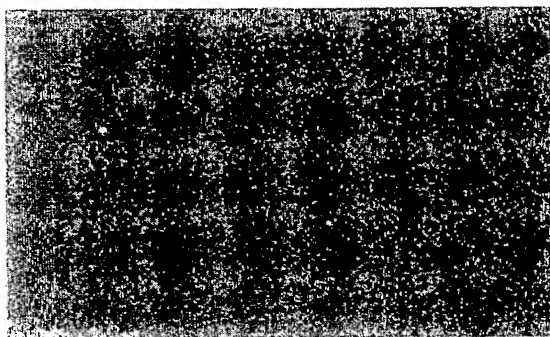




Fig. 17

**„Test der Suspension NCF P 0-0,5/8-EM für die CCP-Politur“**

**Haupttestkriterien:**

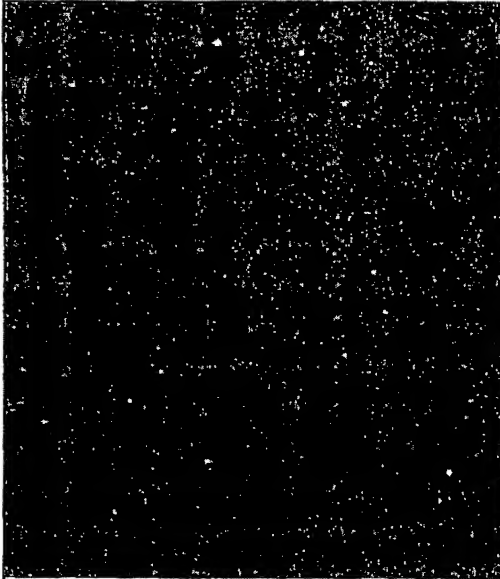

- mittlerer Abtrag
- Abtrag am Rand
- zeitliche Konstanz
- Kratzerstatus
- u.a.

Kriterium	Bewertung	NCF-System	Referenz-Systeme
Abtrag	bis zu 100% höher	800 nm	300 – 600 nm
Abtragsverhalten	Anstieg der Abtragsleistung um 10-20%		
Mikrorauhigkeit	bis zu 100% bessere Qual. (s. Grafik)	0,12 - 0,4 nm	1,1 - 1,7 nm
Kratzer	deutlich weniger (s. Bild)		
Ätz- u. Löseverhalten	generell keines		
Verdünnbarkeit	bis 100% ohne Leistungs- u. Qualitätsverlust		
Eintragsverhalten	hohes Adsorptionpotential		
Stabilität der Susp.	chemisch stabil über lange Laufzeit (20 h)		

Fig. 18

Pech : Gug 55/64

Polierzeit : 30min laufen lassen und 20 min wetzen

1.Sauberkeit	2.µ-Rauhigkeit
	<div> 208_MP3_2,5xMMD  r208nohl Versuch6  2002-10-25 12:34  Op: Mls  Area: 1664 x 1664 um </div> <div> Lot: Versuchslinse  PN: CaF2 MP:3  Smooth Phase </div>  <div> Sq: 0.263 nm  Sa: 0.211 nm  St: 2.243 nm  Points: 102400  QUARTIC </div> <div> 320x320  Hitachi KPM10 2/3"  0.5X Body  No Relay  550-10 nm  5X </div>
Bewertung : sehr gut	Bewertung : Oberfläche ist für den Arbeitsaufwand ganz gut gelungen > gut

Zu 2. µ-Rauhigkeit in nm :

x 2,5

x 40

Mitte :	0.195	0.249
Zone :	0.199	0.257
Rand :	0.264	0.355

3. Abtrag:

4. Bewertung Polierverhalten :

ist zum ersten mal gelaufen wie gewohnt

	Passepolitur	Polierverhalten	Krustenbildung	
Bewertung:	sehr gut	gut	gut	
Bemerkung:		laufen und wetzen o.k.		Rückseite Passe

Fig. 19

Pech : Gugolz55/64

**Polierzeit : 3x2 Std.**

## 1.Sauberkeit

## 2. Passe



**Zu 2.  $\mu$ -Rauhigkeit in nm :**

**x 2,5**

**x 40 nicht gemessen**

<b>Mitte :</b>	0.219	~0.3
<b>Zone :</b>	0.232	~0.3
<b>Rand :</b>	0.256	~0.3

3. Abtrag: 1µ / Std.

#### 4. Bewertung Polierverhalten :

	<b>Passepolitur</b>	<b>Polierverhalten</b>	<b>Krustenbildung</b>	
<b>Bewertung:</b>	gut	gut	schwach	
<b>Bemerkung:</b>		schönes gleichmäßiges ziehen und schnelle weisse Schaumbildung		

Fig. 20

## Ergebnisse im Überblick



 Radius 117 erhaben	Struers	SDS	Propandiol	PEG	PEG 200	PEG 400
Passe / Restfehler	PV 0.025 Streifen	PV 0.039 Streifen	PV 0.041 Streifen	PV 0.025 Streifen		PV 0.04 Streifen
erreicht ja / nein	ja	ja	ja	ja		ja
Sauberkeit						
erreicht ja / nein	ja	ja	ja	ja		ja
Microrauheit	2,5x 40x	0.21-0.26nm ~0.25-0.35nm	0.257-0.369nm 0.356-0.428nm	0.205-0.239nm 0.281-0.339nm		0.208-0.233nm 0.273-0.302nm
erreicht ja / nein	ja	Linse läuft nur unter starkem Zug zu Gefährlich	ja / nein	ja		ja
 Radius 208 hohl						
Passe / Restfehler			PV 0.374 Streifen	PV 0.143 Streifen	PV 0.051 Streifen	PV 0.037 Streifen
erreicht ja / nein	ja		nein	nein	ja	ja
Sauberkeit						
erreicht ja / nein	ja		nein	nein	nein	ja
Microrauheit	2,5x 40x	~ 0.2-0.3nm ~0.25-0.35nm	0.414-0.73nm 0.614-0.678nm		Trotz 5 Anläufe kein akzeptables Ergebnis	0.195-0.264nm 0.249-0.355nm
erreicht ja / nein	ja		nein			ja

Fig. 21

# Ultra-Präzisions-Polishing (UPP) Referenzergebnisse mit Poly-NCF-Compounds

Material	$R_{max}$ (nm)	$R_a$ (nm)	t (min)	Einsatzbereiche
Gd <sub>3</sub> Ge <sub>5</sub> O <sub>12</sub> (Gadolinium Germanium Granat (GGG))	2,5	0,5	10'	hohe Härte (6,5-7,5), nicht spaltbar Mikrowellentechnik, Magnetblasenspeicher
SiC (Siliziumcarbid)	1,5	0,5	8'	hohe Härte (9,6) Infrarotheizstäbe, Hochtemp. Transistoren, Ing.-Keramik
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> (Aluminiumoxid / Saphirkristall o. als Keramikadditiv)	2,8	0,6		hohe Härte (8-9), gute Wärmeleiteigenschaften optische Bauteile, Gleitlager f. Pumpen, Fadenführer
LiNbO <sub>3</sub> (Lithium-Niobat (Metall))	0,7	0,15		Modular-Kristall für Laser (n. Pockelseffect)
ZrO <sub>2</sub> (Zirkoniumoxid)	0,7	0,13		hohe Härte (7) Keramik, Schleifmittel, Röntgenkontrastmittel, Schneidmesser
Y <sub>3</sub> Al <sub>5</sub> O <sub>12</sub> (Yttrium Aluminium Granat (YAG))	5,0	0,9		Lasermaterial
Si (Silizium-Einkristall)	7	2	6'	Halbleiterbereich, Wafer
MgF <sub>2</sub> (Magnesiumfluorid)		0,5		hochbrechende Gläser
Nd:YAG (Neodym)		0,2		Laserstäbe, Kristall zur Lasernerzeugung

# PATENT COOPERATION TREATY

# PCT

## DECLARATION OF NON-ESTABLISHMENT OF INTERNATIONAL SEARCH REPORT

(PCT Article 17(2)(a), Rules 13<sup>ter</sup>.1(c) and 39)

Applicant's or agent's file reference P01874WO	<b>IMPORTANT DECLARATION</b>	Date of mailing (day/month/year) 13/06/2005
International application No. PCT/DE2005/000042	International filing date (day/month/year) 14/01/2005	(Earliest) Priority Date (day/month/year) 17/01/2004
International Patent Classification (IPC) or both national classification and IPC		
Applicant NANOCOMPOUND GMBH		

This International Searching Authority hereby declares, according to Article 17(2)(a), that **no international search report will be established** on the international application for the reasons indicated below.

1. ☐ The subject matter of the international application relates to:
  - a. ☐ scientific theories.
  - b. ☐ mathematical theories.
  - c. ☐ plant varieties.
  - d. ☐ animal varieties.
  - e. ☐ essentially biological processes for the production of plants and animals, other than microbiological processes and the products of such processes.
  - f. ☐ schemes, rules or methods of doing business.
  - g. ☐ schemes, rules or methods of performing purely mental acts.
  - h. ☐ schemes, rules or methods of playing games.
  - i. ☐ methods for treatment of the human body by surgery or therapy.
  - j. ☐ methods for treatment of the animal body by surgery or therapy.
  - k. ☐ diagnostic methods practised on the human or animal body.
  - l. ☐ mere presentations of information.
  - m. ☐ computer programs for which this International Searching Authority is not equipped to search prior art.
2. ☒ The failure of the following parts of the international application to comply with prescribed requirements prevents a meaningful search from being carried out:
 

☒ the description
☒ the claims
☒ the drawings
3. ☐ The failure of the nucleotide and/or amino acid sequence listing to comply with the standard provided for in Annex C of the Administrative Instructions prevents a meaningful search from being carried out:
 

☐ the written form has not been furnished or does not comply with the standard.
 ☐ the computer readable form has not been furnished or does not comply with the standard.
4. Further comments:

Name and mailing address of the ISA/   Facsimile No.	Authorized officer  Véronique Baillou  Telephone No.
---	--

The current application lacks the requisite disclosure (PCT Article 5) and fails to meet the requirement for clarity (PCT Article 6) to such an extent that it does not appear possible to carry out a meaningful search.

The application does not contain the necessary features that are essential to the implementation of the invention. More particularly:

i) the nanoparticulate carbon structure (NCF) that is claimed in claim 1 is unclear, since it is not apparent how the NCF can at the same time have a cubic (sp<sup>3</sup>) modification with fullerene formation (sp<sup>2</sup>). There is also inconsistency between claims 1 and 2: the quantity of admixtures in claim 2 may be zero mass %, whereas in claim 1 these admixtures must be included in the structure. In addition, the total concentration of constituents for the lowest value of carbon in claim 2 is less than 100 mass %. The composition of the structure is therefore unclear;

ii) the product in claim 14 is not adequately defined. The application as a whole does not disclose which atoms are the "surface atoms" of the nano core or what is the structure of the remaining product. The method in claim 15 is thus also unclear;

iii) the methods in claims 16 and 17 are inadequately disclosed, since the application does not contain any information that indicates what educts (claim 16: no definition; claim 17: only the formula C<sub>7</sub>H<sub>5</sub>N<sub>3</sub>O<sub>6</sub> is used, this formula encompassing a number of options) are used or what product is obtained.

The applicant should note that both the negative oxygen balance (in claims 16 and 17) and the definitions of the cage structure (<<C<sub>240</sub> in claim 18 and >>C<sub>240</sub> in example 1) are unclear.

Example 1 reveals precisely this problem and therefore cannot be used as a basis for a person skilled in the art wishing to implement the invention;

iv) since the NCF structure is unclear (see above), the subject matter of claims 20 and 22 to 30 also cannot be searched.

In view of the above objections, it would appear to be that difficult to define the scope of protection that no search can be carried out.

The applicant is advised that claims or parts of claims relating to inventions in respect of which no international search report has been established cannot normally be the subject of an international preliminary examination (PCT Rule 66.1(e)). In its capacity as International Preliminary Examining Authority the EPO generally will not carry out a preliminary examination for subjects that have not been searched. This also applies to cases where the claims were amended after receipt of the international search report (PCT Article 19) or where the applicant submits new claims in the course of the procedure under PCT Chapter II. After entry into the regional phase before the EPO, however, an additional search can be carried out in the course of the examination (cf. EPO Guidelines, C-VI, 8.5) if the defects that led to the declaration under PCT Article 17(2) have been remedied.

VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT  
AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS

PCT

ERKLÄRUNG ÜBER DIE NICHTERSTELLUNG EINES INTERNATIONALEN RECHERCHENBERICHTS

(Artikel 17 (2) a) und Regeln 13ter. 1 c) und 39 PCT)

Aktenzeichen des Anmelders oder Anwalts P01874WO	WICHTIGE ERKLÄRUNG	Absenddatum (Tag/Monat/Jahr) 13/06/2005
Internationales Aktenzeichen PCT/DE2005/000042	Internationales Anmeldedatum (Tag/Monat/Jahr) 14/01/2005	(Frühestes) Prioritätsdatum (Tag/Monat/Jahr) 17/01/2004
Internationale Patentklassifikation (IPC) oder nationale Klassifikation und IPC		
Anmelder NANOCOMPOUND GMBH		

Die Internationale Recherchenbehörde erklärt gemäß Artikel 17(2)a), daß für die internationale Anmeldung aus den nachstehend aufgeführten Gründen **kein internationaler Recherchenbericht erstellt wird**.

1. ☐ Der Gegenstand der internationalen Anmeldung betrifft folgende Gebiete:
- a) ☐ wissenschaftliche Theorien.
  - b) ☐ mathematische Theorien.
  - c) ☐ Pflanzensorten.
  - d) ☐ Tierarten.
  - e) ☐ im wesentlichen biologische Verfahren zur Züchtung von Pflanzen und Tieren mit Ausnahme mikrobiologischer Verfahren und der mit Hilfe dieser Verfahren gewonnenen Erzeugnisse.
  - f) ☐ Pläne, Regeln und Verfahren für eine geschäftliche Tätigkeit.
  - g) ☐ Pläne, Regeln und Verfahren für rein gedankliche Tätigkeiten.
  - h) ☐ Pläne, Regeln und Verfahren für Spiele.
  - i) ☐ Verfahren zur chirurgischen oder therapeutischen Behandlung des menschlichen Körpers.
  - j) ☐ Verfahren zur chirurgischen oder therapeutischen Behandlung des tierischen Körpers.
  - k) ☐ Diagnostizierverfahren zur Anwendung am menschlichen oder tierischen Körper.
  - l) ☐ bloße Wiedergabe von Informationen.
  - m) ☐ Programme von Datenverarbeitungsanlagen, in bezug auf die die Internationale Recherchenbehörde nicht für die Durchführung einer Recherche über den Stand der Technik ausgerüstet ist.
2. ☒ Die folgenden Teile der internationalen Anmeldung entsprechen nicht den vorgeschriebenen Anforderungen, so daß eine sinnvolle Recherche nicht durchgeführt werden kann:
- ☒ die Beschreibung ☒ die Ansprüche ☒ die Zeichnungen
3. ☐ Das Protokoll der Nucleotid- und/oder Aminosäuresequenzen entspricht nicht dem in Anhang C zu den Verwaltungsvorschriften vorgeschriebenen Standard, so daß eine sinnvolle Recherche nicht durchgeführt werden kann.
- ☐ Die schriftliche Form wurde nicht eingereicht bzw. entspricht nicht dem Standard.
- ☐ Die computerlesbare Form wurde nicht eingereicht bzw. entspricht nicht dem Standard.
4. ☐ Die zum Protokoll der Nucleotid- und/oder Aminosäuresequenzen gehörenden Tabellen entsprechen nicht den in Anhang C-bis zu den Verwaltungsvorschriften vorgeschriebenen technischen Anforderungen, so daß eine sinnvolle Recherche nicht durchgeführt werden kann.
- ☐ Die schriftliche Form wurde nicht eingereicht.
- ☐ Die computerlesbare Form wurde nicht eingereicht bzw. entspricht nicht den technischen Anforderungen.
5. Weitere Bemerkungen:

Name und Postanschrift der Internationalen Recherchenbehörde



Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentlaan 2  
NL-2280 HV Rijswijk  
Tel. (+31-70) 340-2040  
Fax: (+31-70) 340-3016

Bevollmächtigter Bediensteter

Véronique Baillou



## WEITERE ANGABEN

PCT/ISA/ 203

Der geltenden Patentanmeldung fehlen die nötige Offenbarung im Sinne von Artikel 5 und die Klarheit-Erfordernisse im Sinne von Artikel 6 PCT in einem solchen Masse, daß eine sinnvolle Recherche unmöglich erscheint.

In der Tat offenbart die Patentanmeldung nicht die nötigen Merkmale, die für die Ausführung der Erfindung wesentlich sind. Insbesondere:

i) die Nano-partikuläre Kohlenstoffstruktur (NCF), die in Anspruch 1 beansprucht wird, ist unklar, da es nicht ersichtlich ist, wie die NCF gleichzeitig eine kubische (sp<sup>3</sup>) Modifikation mit Fulleren-Formation (sp<sup>2</sup>) aufweisen kann. Zusätzlich ist ein Widerspruch zwischen Anspruch 1 und 2 zu erkennen: Die Menge der Beimengungen kann in Anspruch 2 null Massen% sein während in Anspruch 1 diese Beimengungen unbedingt in der Struktur enthalten sein sollten. Zusätzlich ergibt die Summe der Konzentrationen der Bestandteile für den niedrigsten Wert von Kohlenstoff in Anspruch 2 weniger als 100 Massen%. Die Zusammensetzung der Struktur ist deshalb unklar;

ii) das Produkt in Anspruch 14 ist unausreichend definiert. In der gesamten Anmeldung ist nicht offenbart welche Atome die "Oberflächenatome" des Nano-Kerns sind und welche Struktur das verbleibende Produkt hat. Infolgedessen ist auch das Verfahren in Anspruch 15 unklar;

iii) die Verfahren in den Ansprüchen 16 und 17 sind unzulänglich offenbart, da die Anmeldung keine Angaben enthält, welche Edukte (Anspruch 16: keinerlei Definition; Anspruch 17: nur die Formel C<sub>7</sub>H<sub>5</sub>N<sub>3</sub>O<sub>6</sub> wird benutzt, die viele Wahlmöglichkeiten umfaßt) eingesetzt bzw. welche Produkt enthält werden.

Der Anmelder wird darauf hingewiesen, daß sowohl die negative Sauerstoff-Bilanz (in Ansprüchen 16 und 17) als auch die Definitionen der Käfigstruktur (<<C<sub>240</sub> in Anspruch 18 und >>C<sub>240</sub> in Beispiel 1) unklar sind.

Beispiel 1 zeigt genau diese Problematik und deshalb nicht als Basis für den Fachmann, der die Erfindung ausführen will, benutzt werden kann;

iv) da die Struktur NCF nicht klar ist (siehe oben), sind auch die Gegenstände der Ansprüche 20, 22-30 nicht recherchierbar.

Angesicht der obengenannten Einwände erscheint eine Definition des Schutzbereichs so schwer zu sein daß keine Recherche ausgeführt werden kann.

Der Anmelder wird darauf hingewiesen, dass Patentansprüche auf Erfindungen, für die kein internationaler Recherchenbericht erstellt wurde, normalerweise nicht Gegenstand einer internationalen vorläufigen Prüfung sein können (Regel 66.1(e) PCT).

In seiner Eigenschaft als mit, der internationalen vorläufigen Prüfung beauftragte Behörde wird das EPA also in der Regel keine vorläufige Prüfung für Gegenstände durchführen, zu denen keine Recherche vorliegt. Dies gilt auch für den Fall, dass die Patentansprüche nach Erhalt des internationalen Recherchenberichtes geändert wurden (Art. 19 PCT), oder für den Fall, dass der Anmelder im Zuge des Verfahrens gemäss Kapitel II PCT neue Patentansprüche vorlegt.

Nach Eintritt in die regionale Phase vor dem EPA kann jedoch im Zuge der Prüfung eine weitere Recherche durchgeführt werden (Vgl. EPA-Richtlinien

WEITERE ANGABEN

PCT/ISA/ 203

C-VI, 8.5), sollten die Mängel behoben sein, die zu der Erklärung gemäss Art. 17 (2) PCT geführt haben.